



# Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes

Yann Mairesse

## ► To cite this version:

Yann Mairesse. Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT : . tel-00011620

**HAL Id: tel-00011620**

**<https://theses.hal.science/tel-00011620>**

Submitted on 15 Feb 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE PARIS XI  
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE  
Présentée pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES  
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

Spécialité : Lasers et Matière

Par

**Yann MAIRESSE**

<p><b>Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes</b></p>
---

Soutenue le 06 Juillet 2005 devant le jury composé de :

M. Alain HUETZ	PRESIDENT
M. Manuel JOFFRE	RAPPORTEUR
M. Eric MEVEL	RAPPORTEUR
M. Philippe BALCOU	
M. Alfred MAQUET	
M. Hamed MERDJI	



# Remerciements

Durant les trois ans passés au SPAM à Saclay, j'ai eu l'occasion d'interagir avec de nombreuses personnes, qui ont largement contribué à ce travail de thèse. Je remercie tout d'abord l'ensemble du groupe atto-harmoniques, passé ou présent : Pierre Agostini, Thierry Auguste, Willem Boutu, Pierre Breger, Bertrand Carré, Armelle de Bohan, Marco de Grazia, Milutin Kovacev, Hamed Merdji, Patrick Monchicourt, Pascal Salières, Hubertus Wabnitz. J'ai pu bénéficier d'une grande liberté en travaillant dans ce groupe, ainsi que d'une écoute et d'un soutien permanent grâce à la grande disponibilité de chacun.

Je remercie également mon directeur de thèse Alfred Maquet, ainsi que Richard Taïeb et Valérie Vénier. Tous trois ont suivi de près mon travail et m'ont offert la possibilité de discuter régulièrement de mes résultats expérimentaux.

Je remercie Manuel Joffe et Eric Mével d'avoir examiné attentivement mon manuscrit, ainsi qu'Alain Huetz et Philippe Balcou d'avoir accepté de faire partie de mon jury.

La qualité du laser a été un paramètre déterminant dans les expériences que nous avons menées, et je remercie donc l'équipe source, Olivier Gobert, Michel Perdrix, Pierre Meynadier, Fabien Legrand, Fabien Lepetit, Jean-François Hergott et David Garzella, d'avoir toujours fourni des photons d'excellente qualité et d'avoir été d'une grande aide sur les manip.

Je remercie Fabien Quéré pour les discussions approfondies et stimulantes, et pour l'intérêt qu'il a su éveiller en moi sur des sujets parfois lointains du mien, notamment la zoologie et les crabes.

Je remercie Anne L'Huillier de m'avoir accueilli à Lund, et Rodrigo Lopez-Martens de m'avoir logé à Lund. J'ai beaucoup apprécié la collaboration avec le LLC, qui a été enrichissante autant qu'agréable.

Je remercie Michel Bougeard, Eric Caprin, Didier Guyader et André Fillon pour leur disponibilité même dans l'urgence.

Je remercie Jacqueline Bandura et Véronique Gerczy pour le soutien dans les démarches administratives, même dans l'urgence.

D'autres aspects ont également contribué à rendre mon séjour à Saclay agréable, et je remercie donc :

Thierry pour l'humour toujours fin, Pierre pour les discussions sur le temps, Bertrand pour les débats du midi, Armelle pour le thé du matin, David pour le tiramisu de 2000, Jérôme et Willem pour la coinche, Jean-François pour ses défaites au squash, Milutin pour avoir imposé le rangement des vis dans la salle de manip, Olivier pour m'avoir présenté à ses amis plongeurs, Patrick pour le dentiste, Hamed pour les cerises, Fabien pour la coupe, Pascal sans la clio de qui je n'aurais pas pu soutenir ma thèse, Hubertus pour m'avoir ouvert les yeux sur le nucléaire (Atomkraft, nein danke) ...

Enfin, je remercie ma famille pour son support moral et logistique, et bien sûr urakoze cyane Béata pour tout le reste.





# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Éléments de théorie sur les phases harmoniques</b>	<b>15</b>
1.1 Modèle semi-classique de la génération d'harmoniques . . . . .	15
1.1.1 L'ionisation tunnel . . . . .	16
1.1.2 Accélération des électrons dans le continuum et recombinaison radiative . . . . .	17
1.2 Traitement quantique : le modèle de Lewenstein . . . . .	21
1.2.1 L'approximation du champ fort . . . . .	22
1.2.2 Expression du dipôle harmonique . . . . .	22
1.2.3 Equations de point selle . . . . .	24
1.2.4 Instants complexes d'ionisation et de recombinaison . . . . .	25
1.3 Profil temporel de l'émission harmonique . . . . .	27
1.3.1 La phase spectrale . . . . .	27
1.3.2 Structure attoseconde . . . . .	30
1.3.3 Structure femtoseconde . . . . .	34
1.3.4 Conclusion . . . . .	37
<b>2 Mesure de la phase harmonique individuelle : SPIDER Harmonique</b>	<b>41</b>
2.1 Caractérisation complète d'impulsions par interférométrie fréquentielle .	43
2.1.1 Interférométrie fréquentielle . . . . .	43

2.1.2	SPIDER Infrarouge . . . . .	43
2.1.3	Transposition dans l'UVX . . . . .	45
2.2	Interférences spectrales avec des harmoniques . . . . .	46
2.3	Réalisation d'un décalage spectral . . . . .	51
2.4	Mesures SPIDER Harmonique . . . . .	53
2.4.1	Choix des paramètres SPIDER . . . . .	53
2.4.2	Mesure de l'harmonique 11 . . . . .	56
2.5	Mesures monocoup . . . . .	58
2.6	Applications . . . . .	60
2.6.1	Caractérisation des trajectoires électroniques dans la génération d'harmoniques . . . . .	60
2.6.2	Confinement temporel de l'émission harmonique . . . . .	63
2.7	Perspectives : caractérisation d'impulsions attosecondes . . . . .	66
<b>3</b>	<b>Principe de mesure des phases relatives des harmoniques : RABBITT</b>	<b>69</b>
3.1	Ionisation à deux photons, deux couleurs . . . . .	70
3.2	Mise en oeuvre expérimentale . . . . .	72
3.2.1	Dispositif simple . . . . .	72
3.2.2	Dispositif de Lund . . . . .	76
3.2.3	Dispositif Saclay II . . . . .	76
3.3	Reconstruction du train attoseconde . . . . .	78
3.3.1	Analyse des données . . . . .	78
3.3.2	Référence de phase . . . . .	82
3.3.3	Reconstruction du train d'impulsions attosecondes . . . . .	83
<b>4</b>	<b>Synchronisation attoseconde des harmoniques</b>	<b>89</b>
4.1	Dérive de fréquence attoseconde de l'émission harmonique . . . . .	89
4.1.1	Mise en évidence . . . . .	89

4.1.2	Conséquences sur la structure attoseconde . . . . .	91
4.2	Etude théorique de la synchronisation . . . . .	94
4.2.1	Instants d'émission des harmoniques . . . . .	94
4.2.2	Sélection des trajectoires courtes . . . . .	94
4.2.3	Comparaison entre théorie et expérience . . . . .	97
4.3	Visualisation des recombinaisons électroniques . . . . .	98
4.3.1	Mesure large bande . . . . .	98
4.3.2	Recombinaisons électroniques . . . . .	99
4.4	Optimisation de la génération d'impulsions attosecondes . . . . .	102
4.5	Synchronisation dans la coupure . . . . .	106
4.6	Synchronisation des harmoniques faibles . . . . .	108
4.7	Génération d'impulsions attosecondes en polarisation elliptique . . . . .	109
4.7.1	Mesures de la synchronisation . . . . .	109
4.7.2	Etude théorique . . . . .	110
4.8	Synchronisation des harmoniques générées dans les molécules . . . . .	112
4.9	Robustesse de la sélection des trajectoires courtes . . . . .	114
4.9.1	Calculs TDSE . . . . .	114
4.9.2	Mesures du blocage de phase . . . . .	116
4.9.3	Sélection de la trajectoire courte en champ lointain . . . . .	118
4.9.4	Influence de la focalisation sur la synchronisation des trajectoires courtes . . . . .	119
4.10	Sélection spectrale et compression d'impulsions attosecondes . . . . .	121
4.10.1	Elimination des ordres harmoniques faibles . . . . .	121
4.10.2	Compression attoseconde dans un film solide . . . . .	122
4.10.3	Le compresseur plasma . . . . .	126
4.11	Conclusion . . . . .	128

<b>5</b>	<b>Caractérisation complète d'impulsions attosecondes quelconques : la méthode FROGCRA</b>	<b>131</b>
5.1	Le champ électrique comme modulateur de phase ultra-rapide . . . . .	132
5.1.1	Un paquet d'ondes électronique, réplique de l'impulsion UVX . . .	132
5.1.2	Photoionisation UVX en présence d'un champ laser . . . . .	133
5.1.3	Allure de la phase induite par le laser . . . . .	134
5.2	Utilisation du modulateur de phase . . . . .	136
5.2.1	Effet du modulateur de phase sur le paquet électronique . . . . .	136
5.2.2	Bande passante du modulateur de phase . . . . .	137
5.2.3	Caméra à balayage de fente attoseconde . . . . .	138
5.2.4	SPIDER attoseconde . . . . .	139
5.3	Principe de la méthode FROGCRA . . . . .	140
5.3.1	La technique FROG . . . . .	140
5.3.2	Mesures FROG d'impulsions attosecondes : FROGCRA . . . . .	142
5.4	Caractérisation d'une impulsion attoseconde unique . . . . .	143
5.5	Train d'impulsions attosecondes . . . . .	145
5.5.1	De l'impulsion attoseconde unique au train d'impulsions . . . . .	146
5.6	Impulsion complexe . . . . .	154
5.7	Implémentation expérimentale . . . . .	157
5.8	Conclusion . . . . .	158
<b>6</b>	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>161</b>
6.1	Etude de la réponse atomique en champ fort . . . . .	161
6.1.1	Phase du dipôle . . . . .	162
6.1.2	Lien entre les dérivées de fréquences harmonique et attoseconde . .	163
6.1.3	Influence sur le train d'impulsions attosecondes . . . . .	165
6.2	Applications des trains d'impulsions attosecondes . . . . .	167

---

6.2.1	Contrôle de la dynamique électronique en champ laser intense . .	169
6.2.2	Sonder l'ionisation tunnel . . . . .	174
<b>A</b>	<b>Système d'unités</b>	<b>179</b>
<b>B</b>	<b>Publications</b>	<b>181</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>256</b>



# Introduction

La génération d'impulsions lumineuses ultra-brèves permet d'étudier la dynamique de processus ultra-rapides dans la matière, par des expériences de type pompe-sonde. L'avènement des lasers femtosecondes a ainsi ouvert la voie à la femtochimie, c'est-à-dire l'étude résolue en temps des mouvements des noyaux dans les réactions chimiques (Zewail, 2000). La résolution temporelle de ces expériences est limitée par la durée des impulsions employées. Les durées des lasers visibles ou infrarouges les plus brefs atteignent actuellement quasiment le cycle-optique (2.6 fs à 800 nm) (Brabec and Krausz, 2000). Des phénomènes encore plus rapides existent dans la matière, notamment les processus électroniques de coeur au sein des atomes. Ils se déroulent à l'échelle sub-femtoseconde, et sont inaccessibles aux impulsions laser les plus brèves. Pour les étudier, il faut générer des impulsions attosecondes ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ).

Pour produire des impulsions brèves, il est nécessaire de disposer d'une source lumineuse dont le spectre est large. La durée minimale que peut avoir une impulsion gaussienne de largeur spectrale à mi-hauteur  $\Delta\omega$  est  $\Delta t_{\min} = \frac{4\ln 2}{\Delta\omega}$ . C'est la limite de Fourier. Ainsi, une durée de 100 as impose une largeur spectrale minimale de 18 électron-volts. La figure 1 présente le spectre électromagnétique en fonction de l'énergie de photon. Le spectre étant borné du côté des faibles énergies, une source de largeur spectrale 18 eV doit avoir une fréquence centrale supérieure à 9 eV, c'est à dire être dans l'ultraviolet ou l'ultraviolet lointain (UVX).

La génération d'harmoniques d'ordre élevé, qui a lieu lorsque l'on focalise une impulsion laser femtoseconde à des éclaircissements de l'ordre de  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  dans un jet de gaz rare, est une source large bande cohérente dans l'UVX (McPherson et al., 1987; Ferray et al., 1988; Salières et al., 1999). Le spectre obtenu est constitué d'harmoniques

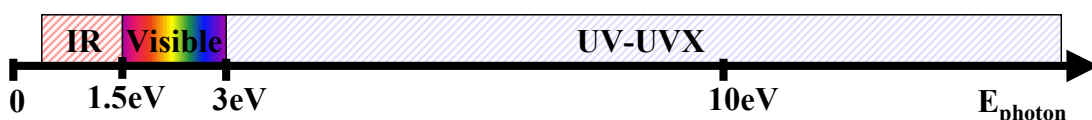


Fig. 1: Spectre électromagnétique.



---

impaires du fondamental et présente une zone d’amplitude quasiment constante, le plateau, suivi d’une brusque coupure. Le plateau peut s’étendre jusqu’à plusieurs centaines d’eV ([Chang et al., 1997](#); [Schnurer et al., 1998](#)), voire au keV ([Seres et al., 2005](#)), ce qui correspond à des limites de Fourier de l’ordre de quelques attosecondes. Les harmoniques d’ordre élevé semblent donc constituer un candidat idéal à la génération d’impulsions attosecondes, et une analyse théorique détaillée du profil temporel de l’émission s’impose.

Le rayonnement harmonique présente une structure spectrale plus complexe que les impulsions laser habituellement caractérisées dans le visible ou le proche infrarouge : le spectre a une étendue beaucoup plus grande ; il est constitué de plusieurs raies harmoniques, dont les amplitudes et les largeurs spectrales peuvent varier, et qui sont en général séparées par des zones d’intensité nulle. L’analyse de la structure temporelle de l’émission harmonique est donc délicate. Dans le chapitre 1, nous montrons que le problème peut être séparé en deux parties : nous considérons d’une part le profil temporel de chaque harmonique, qui est à l’échelle femtoseconde ; d’autre part nous étudions la superposition de plusieurs harmoniques discrètes, ce qui revient à supposer que le laser générateur est continu et donc à ignorer la structure femtoseconde mais permet de déterminer les caractéristiques du rayonnement à l’échelle attoseconde. Nous présentons brièvement les principales propriétés de l’émission harmonique à ces deux échelles de temps à partir d’un modèle simple semi-classique de la génération d’harmoniques, et d’un modèle plus élaboré, complètement quantique.

Dans l’analyse théorique de la structure temporelle du rayonnement harmonique, nous verrons qu’une largeur spectrale importante ne suffit pas pour obtenir des impulsions brèves. Les différentes composantes spectrales de la source doivent de plus être ”en phase”. Cette notion sera précisée dans le chapitre 1, mais d’ores et déjà cette affirmation indique que la mesure d’un spectre de puissance ne permet pas de caractériser temporellement une source. Dans le visible, diverses techniques ont donc été développées pour mesurer le profil temporel d’impulsions femtosecondes ([Agostini and Gobert, 2004](#)).

La caractérisation temporelle expérimentale des harmoniques d’ordre élevé présente des difficultés considérables, à la fois à cause de la complexité et de l’étendue du spectre, que nous venons d’évoquer, et en raison du domaine spectral qu’elles occupent : l’ultra-violet lointain. Les techniques habituellement utilisées dans le visible ou le proche infrarouge reposent en effet sur l’utilisation de cristaux non-linéaires, ou de modulateurs de phase (électro- ou acousto-optiques). Ces éléments n’ont pas d’équivalent direct dans l’UVX, et la simple transposition des méthodes existantes n’est donc pas possible. Il faut envisager de nouvelles techniques de mesure.

Dans le chapitre 2 nous présentons une méthode d’interférométrie spectrale permettant la reconstruction complète du champ électrique d’une harmonique individuelle.

---

Il s'agit de la transposition d'une technique existant dans le domaine optique (SPIDER, *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction*), que nous avons pu réaliser grâce à la cohérence du processus de génération d'harmoniques. Nous l'utilisons pour effectuer la première caractérisation temporelle monocoup d'une harmonique. Nous étudions le profil temporel en fonction de l'ordre harmonique, ce qui permet d'obtenir des informations sur la dynamique des électrons dans le mécanisme de génération présenté au chapitre précédent. Nous démontrons enfin la possibilité de confiner temporellement l'émission en modulant l'ellipticité du laser fondamental.

La structure attoseconde du rayonnement apparaît lors de la superposition de plusieurs harmoniques. En 2001, un train d'impulsions de 250 as, produit par un groupe de 5 harmoniques, a été caractérisé par la technique RABBITT (Paul et al., 2001). Nous exposons au chapitre 3 le principe de cette technique, et présentons les dispositifs expérimentaux que nous avons conçus pour mesurer les trains d'impulsions attosecondes sur de plus larges gammes spectrales.

Les résultats de ces mesures sont discutés au chapitre 4. L'analyse large bande du rayonnement a permis de mettre en évidence un manque de synchronisation des différentes harmoniques à l'échelle attoseconde, qui est intrinsèque au processus de génération et limite la durée d'impulsion que l'on peut obtenir en augmentant le nombre d'harmoniques superposées. Nous effectuons une étude approfondie de cette synchronisation, et faisons le lien avec les études théoriques du chapitre 1. Nous présentons des résultats théoriques et expérimentaux sur l'optimisation de la génération en vue de l'obtention d'impulsions brèves. Nous montrons enfin la possibilité de recomprimer temporellement les impulsions attosecondes.

Dans le chapitre 5, nous présentons une nouvelle technique de mesure qui permet la caractérisation complète d'impulsions attosecondes arbitraires : FROGCRAB. Nous exposons le principe de la méthode, et montrons qu'elle peut caractériser des impulsions attosecondes uniques comme des trains d'impulsions attosecondes. Elle pourrait donc permettre de réaliser en une seule mesure la caractérisation temporelle complète de la génération d'harmoniques, aux échelles femtoseconde et attoseconde. Les outils expérimentaux nécessaires à son implémentation existent, et elle devrait donc prochainement être mise en oeuvre.

Enfin, le chapitre 6 présente une conclusion générale de ce travail de thèse, et développe certaines perspectives. Nous montrons que les études à l'échelle femtoseconde et attoseconde que nous avons menées sont étroitement liées, puisqu'elles caractérisent toutes deux la même phase du dipôle harmonique dans le processus de génération. Nous exposons ensuite quelques possibilités d'applications des trains d'impulsions attosecondes.



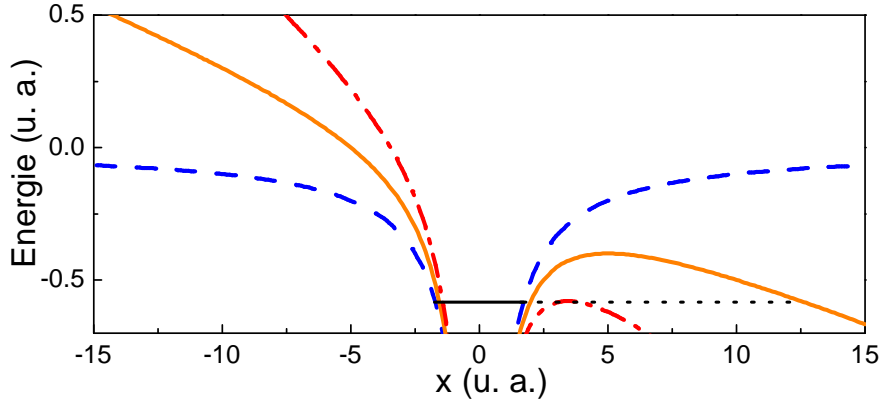
# Chapitre 1

## Eléments de théorie sur les phases harmoniques

La génération d'harmoniques d'ordre élevé présente une structure temporelle complexe, dans laquelle deux échelles de temps interviennent. D'une part, la durée d'émission de chaque harmonique est régie par la durée de l'impulsion laser de génération. Elle a lieu pendant plusieurs cycles optiques, c'est à dire à l'échelle femtoseconde. D'autre part, la superposition de plusieurs harmoniques fait apparaître une sous-structure temporelle qui est liée à la dynamique du processus de génération à l'intérieur de chaque demi-période laser, c'est à dire à l'échelle attoseconde. Nous présentons dans ce chapitre quelques éléments d'étude théorique du mécanisme de génération d'harmoniques par un atome unique. En analysant la phase du dipôle harmonique calculée dans l'approximation du champ fort, nous présentons les caractéristiques principales des aspects temporels de l'émission dans les domaines femtoseconde et attoseconde. Sauf mention contraire, nous utilisons dans les études théoriques le système d'unités atomiques (u.a., voir annexe).

### 1.1 Modèle semi-classique de la génération d'harmoniques

La génération d'harmoniques peut être interprétée à partir d'un modèle semi-classique en trois étapes que nous présentons dans ce paragraphe ([Corkum, 1993](#); [Schafer et al., 1993](#)). Ce modèle, en plus de donner une compréhension qualitative des principales propriétés du rayonnement émis, permet de les déterminer quantitativement avec un accord remarquable avec l'expérience, comme nous le verrons dans les chapitres suivants.



**Fig. 1.1:** Potentiel coulombien  $V_0(x)$  en l'absence de champ laser (tirets). Potentiels  $V(x)$  en présence d'un champ laser  $E = 0.04$  u.a. (ligne continue) et  $E_{sat}^{Ar} = 0.084$  u.a. (trait mixte). La ligne horizontale représente le niveau fondamental de l'argon.

### 1.1.1 L'ionisation tunnel

Nous considérons un électron sur l'état fondamental d'un atome soumis au potentiel coulombien du noyau, et d'énergie potentielle  $V_0 = -1/r$ . Dans le cas de l'argon (figure 1.1), l'énergie de ce niveau est 15.8 eV, soit 0.58 u.a. Lorsque l'atome est soumis à un champ électrique extérieur polarisé linéairement  $\mathbf{E} = E\mathbf{u}_x$ , le potentiel dans lequel est plongé l'électron devient

$$V(x) = V_0(x) + Ex \quad (1.1)$$

Le problème est unidimensionnel. La barrière de potentiel est abaissée d'un côté (vers les  $x$  positifs si  $E < 0$ ), et si le champ est assez fort une partie du paquet d'ondes électronique peut la traverser par effet tunnel. La probabilité de ce passage dépend de la hauteur et de l'épaisseur de la barrière. Nous pouvons calculer l'éclairement laser nécessaire pour que le champ électrique la supprime complètement. Dans ce cas, dit de l'ionisation par suppression de la barrière (*Barrier Suppression Ionization*, BSI, Augst et al. (1989)), la probabilité que l'atome soit ionisé vaut 1 et l'éclairement correspondant est l'éclairement de saturation  $I_{sat}$ . Cette situation est représentée sur la figure 1.1 par la courbe en traits mixtes. La position du maximum de la barrière est  $x_0$  tel que  $V'(x_0) = 0$ , c'est à dire  $x_0 = 1/\sqrt{E}$ , et sa hauteur est  $-I_p - V(x_0) = -I_p + 2\sqrt{E}$ . Le champ électrique et l'éclairement correspondant à la hauteur nulle sont donc

$$E_{sat} = I_p^2/4 \quad (1.2)$$

$$I_{sat} = I_p^4/16 \quad (1.3)$$

$$I_{sat}(\text{W/cm}^2) = 4 \times 10^9 I_p(\text{eV})^4 \quad (1.4)$$

On obtient pour différents gaz rares  $I_{sat}^{Xe} = 9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $I_{sat}^{Ar} = 2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  et  $I_{sat}^{Ne} = 8.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Ainsi, dès que l'éclairement laser atteint quelques  $10^{13}$

$\text{W}/\text{cm}^2$ , la barrière de potentiel est fortement abaissée, et l'ionisation tunnel peut avoir lieu. Cependant, le champ électrique auquel est soumis l'atome varie dans le temps et l'ionisation tunnel ne sera efficace que si la barrière reste abaissée suffisamment longtemps.

Le champ électrique laser instantané s'écrit

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cos \omega_0 t \mathbf{u}_x \quad (1.5)$$

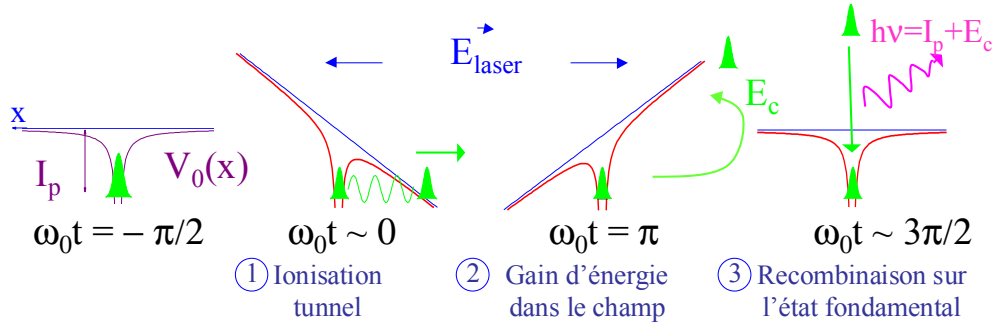
Il s'agit d'une fonction oscillante de période  $T_0 = 2\pi/\omega_0$  ( $= 2.67$  fs pour  $\lambda_0 = 800$  nm). Le potentiel  $V(x)$  oscille donc également, et l'abaissement de la barrière est maximum à  $t = 0 + nT_0/2$ , où  $n$  est un entier. C'est autour de ces instants, c'est à dire deux fois par cycle optique, que l'ionisation tunnel peut se produire. Pour évaluer l'efficacité du processus, Keldysh a introduit un paramètre d'adiabaticité  $\gamma$ , qui est le rapport entre le temps  $\tau_t$  que mettrait l'électron pour traverser la barrière et la période  $T_0$  du champ électrique (Keldysh, 1965). L'épaisseur de la barrière de potentiel est approximativement  $I_p/E$  et l'on considère que l'électron la traverse avec une vitesse moyenne  $\sqrt{2I_p}$ . On obtient donc  $\tau_t = \sqrt{I_p/2E^2}$ , et

$$\tau_t/T_0 \propto \omega_0 \sqrt{I_p/2E^2} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \gamma \quad (1.6)$$

où  $U_p = E^2/4\omega^2$  est le potentiel pondéromoteur. Si le champ laser a une forte amplitude et une basse fréquence, la barrière de potentiel est fortement abaissée, et l'est pendant un temps suffisant pour que l'ionisation tunnel soit efficace. Il s'agit de la limite  $\gamma \ll 1$  qui correspond au *régime tunnel* d'ionisation. En revanche, avec un faible champ laser de fréquence élevée, la barrière de potentiel est trop épaisse et est abaissée pendant un temps trop bref pour permettre une ionisation tunnel efficace. Le cas où  $\gamma \gg 1$  est celui du *régime multiphotonique* d'ionisation. Dans les expériences que nous considérerons, nous travaillons typiquement en focalisant un laser de 800 nm sur l'argon à un éclairement de quelques  $10^{14}$   $\text{W}/\text{cm}^2$ . Ceci correspond à  $\gamma \lesssim 1$ . Nous serons donc plutôt en régime tunnel.

### 1.1.2 Accélération des électrons dans le continuum et recombinaison radiative

Une partie du paquet d'ondes électronique passe donc par effet tunnel dans le continuum au voisinage de l'instant auquel l'amplitude du champ laser est maximale (figure 1.2, étape 1). Une fois sorti du puits de potentiel coulombien, on considérera que le champ laser est suffisamment fort pour dominer la dynamique électronique : l'électron ne subit plus l'influence du noyau et se comporte comme une particule libre dans le champ laser. Le potentiel dans lequel il évolue est linéaire, avec une pente déterminée par la valeur



**Fig. 1.2:** Modèle en trois étapes de la génération d'harmoniques.

instantanée du champ électrique. Ainsi, juste après l'ionisation, l'électron est accéléré. Lorsque le signe du champ électrique change, la pente du potentiel s'inverse et l'électron subit une décélération (figure 1.2, étape 2). Selon l'instant  $t_i$  auquel il a été ionisé, il peut revenir au voisinage de  $x = 0$ , ou effectuer des oscillations longitudinales en s'éloignant peu à peu de l'ion parent. Si l'électron repasse au voisinage de l'origine, il peut se recombiner avec l'ion parent et émettre un photon (figure 1.2, étape 3). L'énergie du rayonnement émis est déterminée par l'énergie cinétique  $E_c$  gagnée par l'électron dans le continuum :

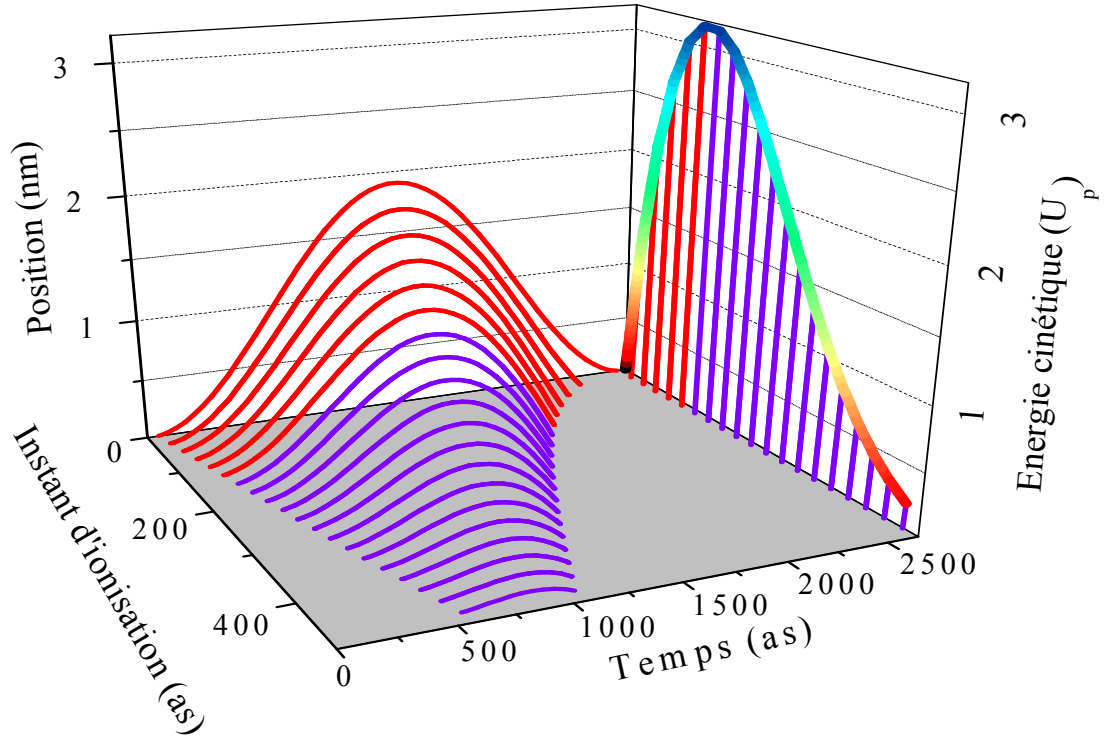
$$\hbar\omega = I_p + E_c \quad (1.7)$$

Les trois étapes (ionisation tunnel, accélération, recombinaison radiative) se répètent chaque demi-période laser, quand l'amplitude du champ électrique est suffisante pour permettre l'ionisation. L'émission UVX est donc périodique de période  $T_0/2$ . Cette périodicité donne naissance dans le domaine spectral à des franges d'interférence et le spectre du rayonnement émis est constitué de raies harmoniques séparées de  $2\omega_0$ . Les électrons sortent du puits de potentiel dans des directions opposées d'une demi-période à la suivante. Cette symétrie d'inversion du processus implique un changement de signe dans l'émission, et les harmoniques émises sont par conséquent impaires.

Le mouvement de l'électron dans le continuum peut être étudié classiquement à partir des équations de Newton. L'équation du mouvement est

$$\ddot{x}(t) = -E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (1.8)$$

Il est nécessaire de connaître les conditions initiales sur la position et la vitesse de l'électron afin de procéder à l'intégration. Pour simplifier le problème on considère que l'électron est initialement situé à l'origine :  $x(t_i) = 0$ . On néglige ainsi l'extension de son mouvement à travers la barrière tunnel. D'autre part, on suppose que l'électron a une vitesse nulle après l'effet tunnel car il perd toute son énergie cinétique en traversant



**Fig. 1.3:** Trajectoires classiques des électrons dans un champ laser, en fonction de l'instant d'ionisation. Les trajectoires courtes sont en bleu, et les longues en rouge. La courbe sur le panneau de droite est l'énergie cinétique de l'électron lors de son retour à l'origine, en unités de  $U_p$ .

la barrière :  $\dot{x}(t_i) = 0$ . On obtient alors :

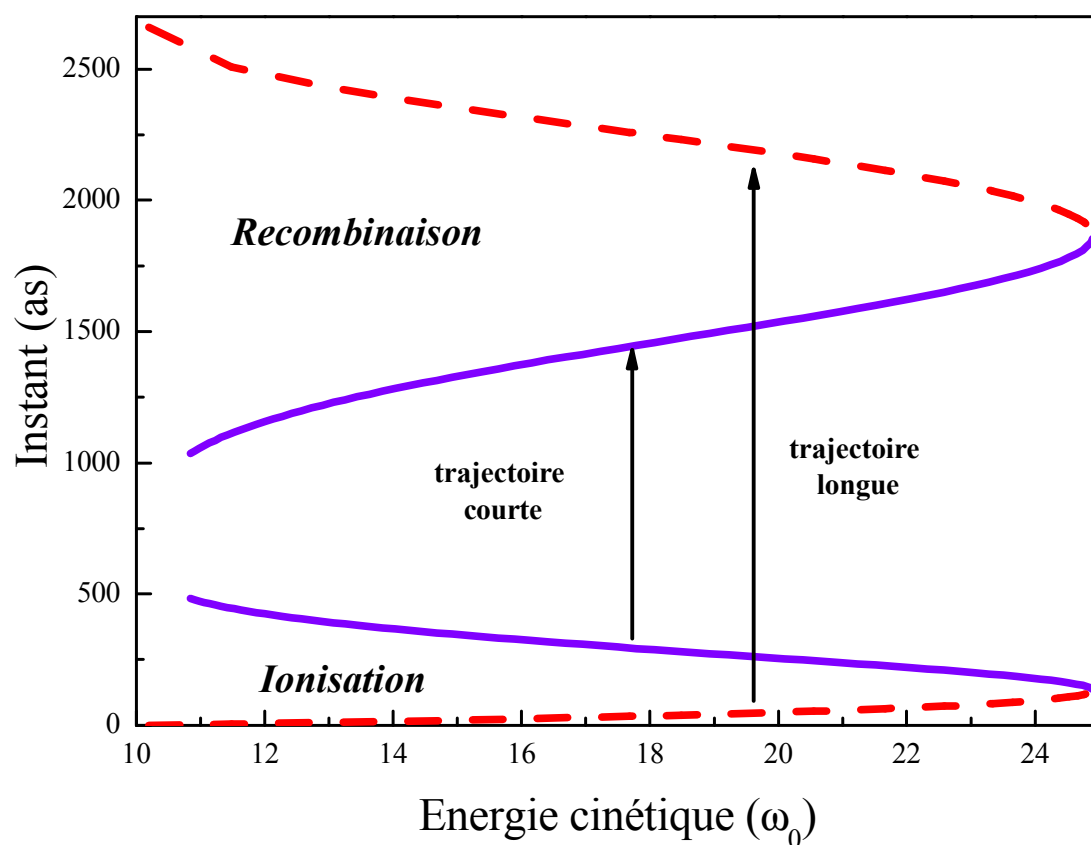
$$\dot{x}(t) = -\frac{E_0}{\omega_0}(\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_i)) \quad (1.9)$$

$$x(t) = \frac{E_0}{\omega_0^2}(\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_i)) + \frac{E_0}{\omega_0} \sin(\omega_0 t_i)(t - t_i) \quad (1.10)$$

Les trajectoires correspondant à différents instants d'ionisation sont représentées sur la figure 1.3, dans le cas d'un éclairement laser de  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Nous ne considérons sur la figure que les trajectoires qui reviennent en  $x = 0$  en moins d'une période laser. Les instants d'ionisation correspondants sont tous situés dans un intervalle de 500 as après le maximum du champ laser. L'amplitude de l'excursion de l'électron dans le continuum décroît de manière continue lorsque l'instant d'ionisation augmente. Elle est maximale en  $t_i = 0$  et vaut environ 2 nm, soit 40 unités atomiques. L'amplitude du mouvement est considérable, et peut atteindre la dizaine de nanomètres à des éclairements lasers plus élevés.

Afin d'étudier le comportement des harmoniques émises lors de la recombinaison, nous





**Fig. 1.4:** Instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique, dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les trajectoires courtes sont représentées en tirets rouges et les longues en traits continus bleus.

calculons l'énergie cinétique de l'électron à son retour en  $x = 0$ . La valeur de  $E_c$  correspondant à chaque trajectoire de la figure 1.3 est représentée sur le panneau latéral du graphe. Alors que l'évolution de l'amplitude du mouvement des électrons en fonction de l'instant d'ionisation est monotone, l'énergie cinétique gagnée par l'électron dans le continuum passe par un maximum qui vaut  $E_c^{max} = 3.17U_p$ . Cette valeur correspond à la loi de coupure de la génération d'harmoniques, qui est donc ici expliquée en termes de dynamique classique des électrons dans le continuum. De part et d'autre de ce maximum, chaque valeur d'énergie est associée à deux trajectoires, et les chemins empruntés par l'électron dans le continuum sont ainsi séparés en deux familles : trajectoires longues, représentées en rouge, et trajectoires courtes représentées en violet. Pour les trajectoires longues, l'énergie cinétique augmente avec l'instant d'ionisation alors qu'elle diminue pour les courtes. Ces deux familles convergent dans la coupure.

Une représentation des deux familles de trajectoires peut être obtenue en traçant l'évolution des instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'énergie de retour (figure 1.4) (Kazamias and Balcou, 2004). Tandis que l'ionisation a lieu dans un intervalle de 500 as, les instants de recombinaison s'étalent sur une plus large plage temporelle, de 1000 à 2600 as. Ces instants sont très différents pour les trajectoires courtes et longues, mais cette différence tend vers zéro à l'approche de la coupure.

Le modèle que nous avons présenté dans ce paragraphe est une image semi-classique de la génération d'harmoniques : on évoque un argument quantique pour l'étape d'ionisation tunnel, puis la propagation de l'électron libre est considérée purement classiquement. Il a l'avantage de permettre une analyse simple du processus et donne accès aux grandeurs importantes telles que l'énergie de la coupure ou les instants d'ionisation et de recombinaison. Afin d'en évaluer la validité, il est nécessaire de le comparer à une approche plus rigoureuse en effectuant un traitement quantique.

## 1.2 Traitement quantique : le modèle de Lewenstein

Une théorie complètement quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé a été développée par Maciej Lewenstein (Lewenstein et al., 1994). Elle donne une justification des hypothèses effectuées dans le modèle semi-classique, et permet un calcul du dipôle harmonique prenant en compte les effets quantiques associés à l'effet tunnel ou à la diffusion du paquet d'ondes électronique. Cette théorie a été intensivement utilisée par de nombreuses équipes travaillant sur la physique atomique en champ fort et a apporté une compréhension simple et rigoureuse des principales propriétés du rayonnement harmonique, avec un accord souvent remarquable avec l'expérience.

### 1.2.1 L'approximation du champ fort

Dans l'approximation d'un seul électron actif, l'équation de Schrödinger pour un atome dans un champ électrique  $\mathbf{E} = -\partial\mathbf{A}/\partial t$  ( $\mathbf{A}(t)$  étant le potentiel vecteur) s'écrit :

$$i\frac{\partial|\psi(t)\rangle}{\partial t} = (-\nabla_r^2/2 + V_0(\mathbf{x}) + \mathbf{E}\cdot\mathbf{x})|\psi(t)\rangle \quad (1.11)$$

où  $V_0(\mathbf{x})$  est le potentiel atomique, et  $\mathbf{E}\cdot\mathbf{x}$  le potentiel d'interaction avec le champ.

Le modèle de Lewenstein repose sur l'approximation du champ fort (*Strong Field Approximation, SFA*, Keldysh (1965); Lewenstein et al. (1994)). Cette approximation est justifiée dans le régime d'ionisation tunnel ( $\gamma \ll 1$ ). Le champ laser a alors une fréquence suffisamment basse pour ne pas induire de transfert de population significatif du fondamental aux états excités : ***seul l'état fondamental de la structure atomique est considéré.***

De plus, champ laser est supposé assez intense pour que l'électron libéré dans le continuum par ionisation tunnel soit insensible au potentiel coulombien de l'ion : ***l'électron est considéré libre dans le continuum.***

Enfin, on considèrera des éclaircements bien inférieurs à l'éclaircissement de saturation du gaz, de telle sorte que le taux d'ionisation reste faible : ***la déplétion du fondamental est négligée.***

Ces hypothèses sont assez restrictives puisqu'elles imposent de se placer dans une gamme d'éclaircissement précise : l'éclaircissement  $I_0$  doit être assez fort pour avoir  $\gamma \ll 1$  mais assez faible pour satisfaire  $I_0 \ll I_{sat}$ . En fait, la comparaison des résultats obtenus dans le cadre de l'approximation du champ fort aux résultats expérimentaux ainsi qu'à la résolution directe de l'équation de Schrödinger dépendant du temps montrent que cette approximation est valable dans une gamme d'éclaircissement beaucoup plus vaste.

### 1.2.2 Expression du dipôle harmonique

Dans le cadre de l'approximation du champ fort, avec les hypothèses précédentes, l'expression du moment dipolaire  $\mathbf{x}(t) = \langle\psi(t)|\mathbf{x}|\psi(t)\rangle$  s'écrit (Lewenstein et al., 1994) :

$$\mathbf{x}(t) = -i \int_0^t dt_i \int d\mathbf{p} d\mathbf{p}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)}^* e^{iS(\mathbf{p},t_i,t)} \mathbf{E}(t_i) d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)} \quad (1.12)$$

On peut donner une interprétation intuitive de cette formule en relation avec l'étude semi-classique précédente. L'intégrand représente l'amplitude de probabilité du processus d'émission lumineuse résultant de la recombinaison à l'instant  $t_r = t$  d'un paquet d'ondes électronique de moment canonique  $\mathbf{p}$  qui a été ionisé à l'instant  $t_i$ .

Une partie du paquet d'ondes électronique passe du fondamental au continuum à l'instant  $t_i$  par transition dipolaire électrique induite par le champ  $\mathbf{E}$ . La probabilité de cette transition entre le fondamental de l'atome et l'état du continuum de moment canonique  $\mathbf{p}$ , c'est à dire d'impulsion  $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i)$ , est  $\mathbf{E}(t_i) \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)}$ . Une fois dans le continuum, le paquet d'ondes électronique se propage librement sous l'action du champ laser, et acquiert une phase  $S(\mathbf{p}, t_i, t)$ , qui est l'intégrale d'action sur la trajectoire empruntée :

$$S(\mathbf{p}, t_i, t_r) = - \int_{t_i}^{t_r} \left[ \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t''))^2}{2} + I_p \right] dt'' \quad (1.13)$$

Après accélération, le paquet d'ondes électronique a une impulsion  $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$  et se recombine à l'instant  $t_r$  par transition dipolaire électrique de probabilité  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_r)}$ . Le dipôle harmonique est la somme des contributions de toutes les trajectoires électroniques possibles, c'est à dire une somme sur les instants d'ionisation  $t_i$  et les moments canoniques  $\mathbf{p}$ .

Pour obtenir le spectre harmonique il suffit de calculer la transformée de Fourier du moment dipolaire :

$$\mathbf{x}(\omega_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{x}(\mathbf{t}) e^{i\omega_q t} dt = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^t dt_i \int d\mathbf{p} \mathbf{b}(t, t_i, \mathbf{p}) e^{i\varphi_q(t, t_i, \mathbf{p})} \quad (1.14)$$

avec

$$\varphi_q(t_i, t_r, \mathbf{p}) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[ \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2}{2} + I_p \right] dt \quad (1.15)$$

et où  $\mathbf{b}$  est l'amplitude de chaque contribution. Il s'agit d'une triple intégrale, sur le moment canonique  $\mathbf{p}$ , les instants d'ionisation  $t_i$  et de recombinaison  $t$ .

Cette formule peut être reconsidérée dans le cadre de la théorie des intégrales de chemin de Feynman ([Salières et al., 2001](#)). L'amplitude de probabilité d'un processus y est décrite par une somme cohérente des contributions de tous les chemins quantiques reliant l'état initial à l'état final. Le poids de chaque contribution est un nombre complexe dont la phase est l'intégrale d'action classique suivant le chemin emprunté.

L'intégrale de la formule 1.15 fait intervenir une infinité de chemins quantiques dans le processus de génération d'harmoniques, ce qui rend son calcul fastidieux. Néanmoins, dans le régime de champ fort, la phase  $\varphi_q$  varie en général plus vite en fonction des paramètres d'intégration que l'amplitude  $\mathbf{b}$ . Les chemins pour lesquels la phase de l'intégrand varie rapidement vont avoir un rôle quasiment nul, puisque les différentes contributions s'annulent dans la somme. Les chemins quantiques qui vont dominer l'intégrale sont donc ceux sur lesquels la phase est stationnaire :  $\delta(S[\mathbf{p}, t_i, t_r] + \omega_q t_r) = 0$ .

On peut invoquer ce principe de la phase stationnaire pour simplifier le calcul de l'intégrale 1.12 en éliminant la sommation sur  $\mathbf{p}$ . La stationnarité de l'action par rapport

à la variable moment canonique s'écrit  $\nabla_{\mathbf{p}} S(\mathbf{p}, t_i, t_r) = \mathbf{0}$ , et donne :

$$\mathbf{p}_s = -\frac{1}{t_r - t_i} \int_{t_i}^{t_r} \mathbf{A}(t') dt' \quad (1.16)$$

Cette condition impose une valeur du moment canonique  $\mathbf{p}_s$  pour chaque couple d'instants  $(t_i, t_r)$ . Le moment dipolaire harmonique devient alors :

$$\mathbf{x}(t) = i \int_0^{+\infty} d\tau \left( \frac{\pi}{\nu + i\tau/2} \right)^{3/2} \mathbf{d}_{\mathbf{p}_s + \mathbf{A}(t)}^* e^{iS(\mathbf{p}_s, t, \tau)} \mathbf{E}(t - \tau) \mathbf{d}_{\mathbf{p}_s + \mathbf{A}(t-\tau)} \quad (1.17)$$

où  $\nu$  est une constante de régularisation et  $\tau = t_r - t_i = t - t_i$  le temps du trajet dans le continuum. Cette équation est la formule qui permet de calculer le dipôle harmonique dans le modèle de Lewenstein et qui a été utilisée avec succès pour prédire de nombreuses propriétés du rayonnement harmonique.

### 1.2.3 Equations de point selle

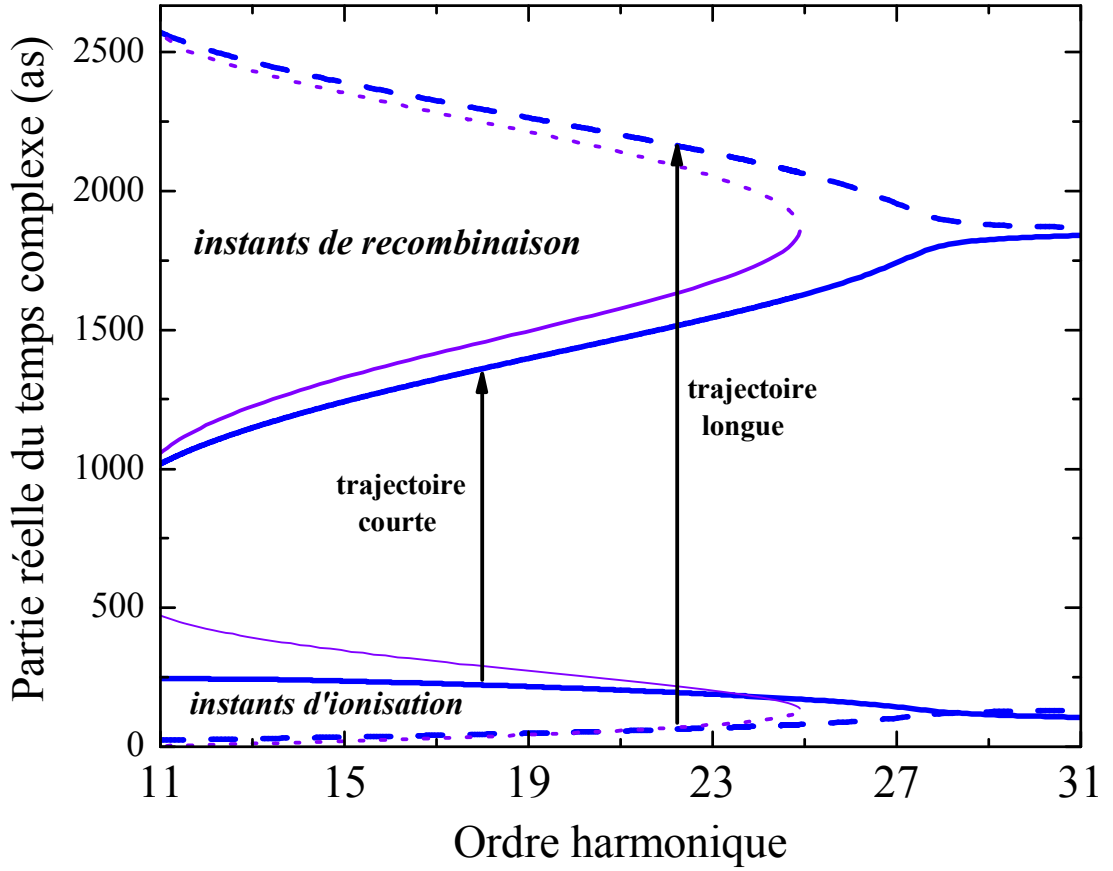
Nous n'avons utilisé pour simplifier le calcul du dipôle harmonique qu'une partie de la condition de phase stationnaire. La différentiation complète de la phase  $\varphi_q(t_i, t_r, \mathbf{p})$  par rapport à  $t_i$ ,  $\mathbf{p}$  et  $t_r$  donne respectivement :

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} + I_p = 0 \quad (1.18)$$

$$\int_{t_i}^{t_r} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) dt = 0 \quad (1.19)$$

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r))^2}{2} + I_p = \omega_q \quad (1.20)$$

Ces trois équations (équations de point selle) reflètent les différentes étapes du modèle semi-classique de la génération d'harmonique. L'équation 1.18 stipule qu'à l'instant d'ionisation, la somme de l'énergie cinétique de l'électron et du potentiel d'ionisation doit être nulle :  $E_c(t_i) + I_p = 0$ . L'énergie cinétique correspondante est alors négative, ce qui n'est pas possible classiquement mais est permis si le temps  $t_i$  est complexe. La partie imaginaire du temps peut être interprétée comme une trace du processus d'effet tunnel à travers la barrière de potentiel. L'équation 1.19 concerne la propagation dans le continuum, et peut être réécrite comme  $\int_{t_i}^{t_r} \mathbf{v}(t) dt = 0$ ,  $\mathbf{v}$  étant la vitesse de l'électron. Elle signifie donc que la trajectoire de l'électron est fermée. Enfin, l'équation 1.20 correspond à l'étape de recombinaison radiative et définit l'énergie du photon émis comme la somme du potentiel d'ionisation et de l'énergie cinétique gagnée par l'électron dans le continuum.



**Fig. 1.5:** Partie réelle des instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique, calculés dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> par résolution des équations complexes de point selle. Les trajectoires courtes sont représentées en traits continus et les longues en tirets. Les lignes fines sont les résultats du calcul classique.

#### 1.2.4 Instants complexes d'ionisation et de recombinaison

La résolution de ce système d'équations permet de déterminer  $t_i$ ,  $\mathbf{p}$  et  $t_r$  (Lewenstein et al., 1994; Antoine et al., 1996b). Armelle de Bohan et Thierry Auguste en ont fait l'étude en fonction de l'ordre harmonique à Saclay (Mairesse et al., 2003, 2004), et l'on peut comparer la partie réelle des grandeurs complexes calculées aux résultats obtenus classiquement à partir de l'équation de Newton (figure 1.5).

L'allure générale obtenue est similaire au cas classique. On identifie deux trajectoires, correspondant à des temps d'excursion  $\tau = t_r - t_i$  courts et longs. L'évolution avec l'ordre harmonique des instants d'ionisation et de recombinaison est en bon accord avec les résultats donnés par la résolution de l'équation de Newton. Cela signifie que l'étude classique des trajectoires électroniques est une bonne approximation du phénomène, qui peut s'avérer suffisante pour analyser avec précision certaines propriétés

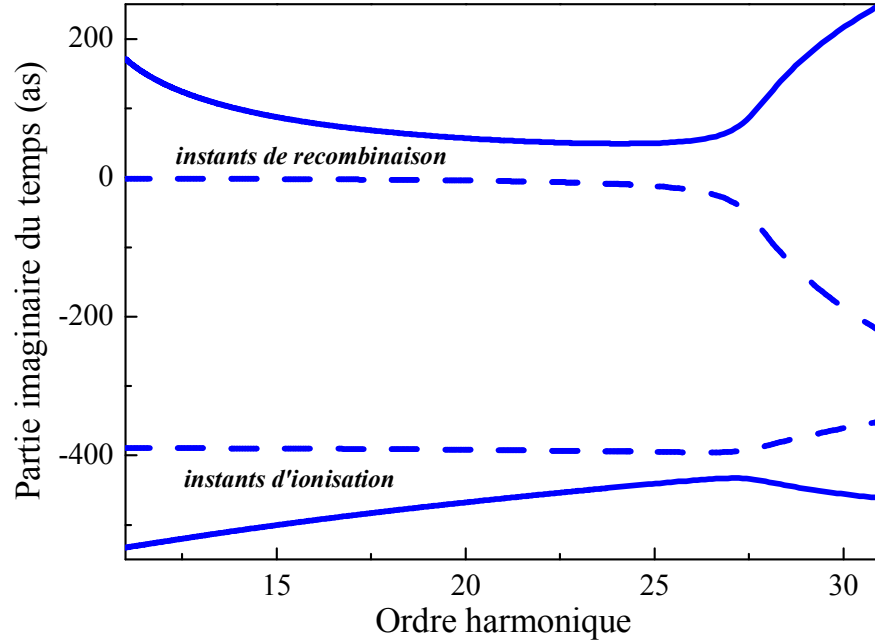
de la génération d'harmoniques. Le calcul quantique est cependant plus rigoureux, et permet notamment d'accéder au comportement de la coupure, alors que cette zone est classiquement interdite.

La position de la coupure donnée par le calcul quantique se trouve à une énergie supérieure à celle obtenue classiquement. En effet, le modèle quantique apporte une correction à la loi de coupure  $E_{coupure} = F(I_p/U_p)I_p + 3.17U_p$ , où  $F(I_p/U_p)$  est un facteur variant de 1.32 à 1.2 pour  $I_p/U_p$  variant de 1 à 4 (Lewenstein et al., 1994). Les instants d'ionisation et de recombinaison associés aux trajectoires courtes et longues convergent asymptotiquement dans cette zone : il n'y a plus qu'une seule famille de trajectoires dans la coupure. Sur la figure, les courbes des instants d'ionisation des deux familles se croisent. Cet effet est probablement dû à un problème de convergence numérique plutôt qu'à un effet physique.

La différence entre les instants classiques et quantiques est infime sur les trajectoires longues, mais plus importante pour les courtes. Cet effet peut être interprété en analysant l'étape d'ionisation tunnel. Le champ électrique laser étant cosinusoidal, son amplitude décroît lorsque  $t$  augmente au voisinage de 0. Les instants d'ionisation les plus faibles, qui sont associés aux trajectoires longues, correspondent donc aux valeurs les plus fortes du champ. L'épaisseur de la barrière de potentiel que l'électron doit traverser par effet tunnel est alors minimale. Au fur et à mesure que l'instant d'ionisation augmente, cette épaisseur devient plus importante. Les effets quantiques sont alors plus marqués, ce qui se manifeste par une différence plus importante entre les résultats des calculs classiques et quantiques. Pour les trajectoires longues, l'épaisseur de la barrière est suffisamment faible pour rendre cette différence négligeable. En revanche, pour les harmoniques les plus faibles émises par les trajectoires courtes, l'écart atteint plusieurs centaines d'attosecondes.

Les effets quantiques dus à l'ionisation tunnel sont associés à la partie imaginaire des instants d'ionisation et de recombinaison, que nous représentons sur la figure 1.6. Cette partie imaginaire est importante dans l'étape d'ionisation, et plus faible dans la recombinaison. Dans les deux cas, elle est plus forte pour les trajectoires courtes, ce qui confirme l'influence de l'épaisseur de la barrière de potentiel à traverser. Le comportement des parties imaginaires change brusquement dans la coupure, et leur contribution augmente, notamment dans le processus de recombinaison. Ce phénomène montre le caractère purement quantique de la génération d'harmoniques dans cette zone.

En conclusion, le calcul quantique des instants d'ionisation et de recombinaison par résolution des équations de point selle donne un accord général remarquablement bon avec le modèle semi-classique, ce qui montre la pertinence de cette analyse simple. Parmi toutes les trajectoires possibles dans le continuum, deux familles, qui correspondent aux trajectoires classiques, rendent l'action stationnaire et dominant donc l'émission. On peut alors écrire une expression simplifiée du dipôle harmonique dans le domaine



**Fig. 1.6:** Partie imaginaire des instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique, calculés dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les trajectoires courtes sont représentées en traits continus et les longues en tirets.

spectral (formule 1.14) comme une somme sur les familles de trajectoires  $j$  :

$$\mathbf{x}(\omega_q) = \sum_j \mathbf{A}_q^j e^{i\varphi_q^j} \quad (1.21)$$

Dans le plateau, les mouvements classiques des électrons menant à l'émission d'un harmonique donnée sont très différents sur les deux trajectoires. En conséquence, les amplitudes  $A_q^j$  et phases  $\varphi_q^j$  des contributions des deux familles sont également différentes. Les principales propriétés du rayonnement harmonique, telles que le profil spatial ou la structure temporelle, dépendent donc fortement de la famille de trajectoires considérée. Nous utilisons dans la suite de ce chapitre les calculs présentés dans cette section pour étudier le profil temporel de la génération d'harmoniques, en analysant en particulier les comportements des deux familles de trajectoires.

## 1.3 Profil temporel de l'émission harmonique

### 1.3.1 La phase spectrale

Avant d'étudier le cas particulier du champ électrique harmonique, nous exposons dans ce paragraphe quelques notions sur un paramètre particulièrement important dans la



caractérisation temporelle d'une impulsion électromagnétique : la phase spectrale.

Le champ électrique d'une impulsion lumineuse polarisée linéairement est caractérisé dans le domaine temporel par un module  $|E(t)|$  et une phase temporelle  $\varphi(t)$  :

$$E(t) = |E(t)| e^{i\varphi(t)} \quad (1.22)$$

Ces grandeurs sont difficile d'accès expérimentalement. C'est pourquoi on raisonne plutôt généralement dans le domaine spectral. Le profil spectral du champ est la transformée de Fourier complexe du profil temporel, et est défini par un module spectral  $|E(\omega)|$  et une phase spectrale  $\varphi(\omega)$  :

$$E(\omega) = |E(\omega)| e^{i\varphi(\omega)} \quad (1.23)$$

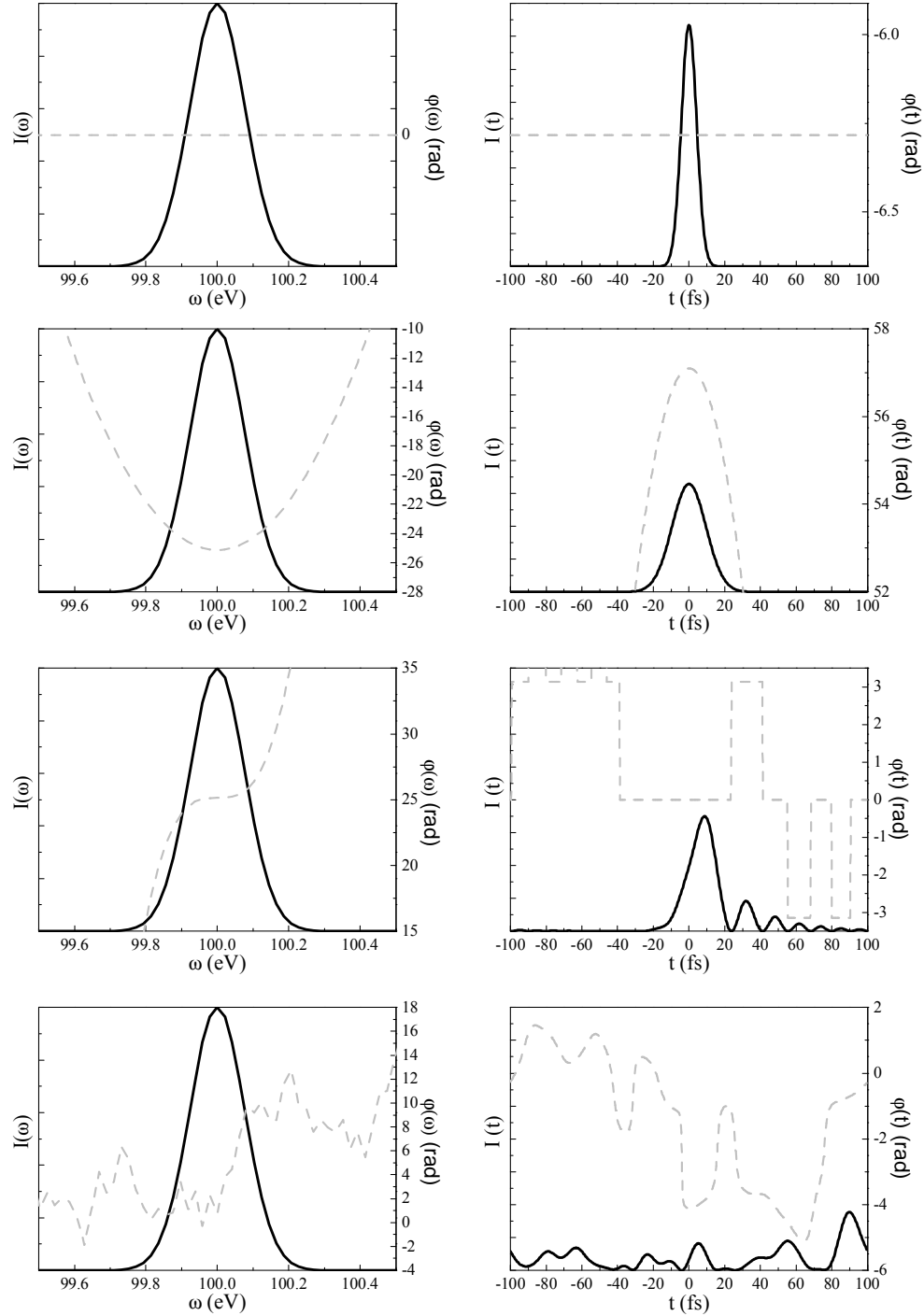
La mesure du spectre de puissance d'une impulsion donne accès aisément à  $|E(\omega)|^2$ . Cette quantité ne permet d'obtenir qu'une information très limitée sur les caractéristiques temporelles du champ électrique : dans le cas d'impulsions gaussiennes, la transformée de Fourier de  $|E(\omega)|$  est le profil temporel le plus court que l'on peut obtenir, c'est à dire la *limite de Fourier*. Mais des variations importantes de  $\varphi(\omega)$  induisent en général une distorsion et un élargissement du profil temporel.

Nous illustrons de manière simple l'importance de la phase spectrale en présentant sur la figure 1.7 les profils temporels d'une impulsion de spectre gaussien de largeur 0.18 eV, avec différentes dépendances de  $\varphi(\omega)$ . Le premier cas, où la phase spectrale est constante, donne des impulsions limitées par transformée de Fourier, de profil gaussien et de durée 10 fs. Le cas d'une phase spectrale linéaire de pente  $t_0$  donnerait le même profil mais décalé temporellement de  $t_0$ . En effet,

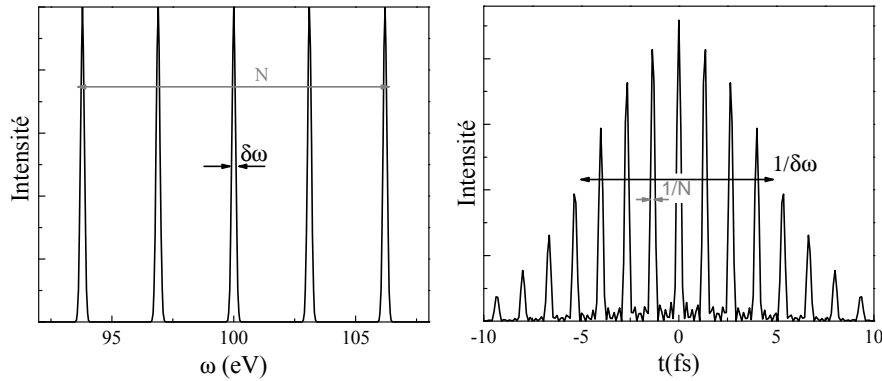
$$F[E(\omega) \times e^{i\omega t_0}] = F[E(\omega)] \otimes F[e^{i\omega t_0}] = E(t) \otimes \delta_{t_0} = E(t - t_0) \quad (1.24)$$

Lorsque la phase spectrale est non linéaire, un élargissement du profil temporel apparaît. Le cas particulier de la phase spectrale quadratique est intéressant : il s'agit d'impulsions à dérive de fréquence linéaire. Le profil temporel obtenu est toujours gaussien, mais élargi, et la phase temporelle est quadratique. La dérive de fréquence, ou *chirp* en anglais, caractérise le fait que les différentes composantes spectrales de l'impulsion ne sont pas synchronisées, mais régulièrement étalées dans le temps. La fréquence instantanée d'une impulsion est donnée par la dérivée de sa phase temporelle :  $\omega(t) = -\partial\varphi/\partial t$ . Dans le cas d'une phase temporelle quadratique, la fréquence instantanée varie linéairement dans le temps. On parle de dérive de fréquence positive lorsque les fréquences les plus faibles arrivent en premier.

Une phase spectrale cubique induit de plus fortes distorsions du profil temporel : il est constitué d'une impulsion principale, suivie de rebonds. Il semble donc que plus la phase spectrale varie rapidement, plus le profil temporel en est affecté. Cette affirmation est



**Fig. 1.7:** Effet de différentes phases spectrales sur le profil temporel d'une impulsion de spectre gaussien. Les phases sont représentées par les lignes discontinues grises. Les profils temporels sont normalisés et présentés sur la même échelle. Une durée courte est ainsi associée à une valeur crête élevée.



**Fig. 1.8:** Structure temporelle d'un peigne d'harmoniques limitées par transformée de Fourier.

confirmée par le calcul du profil temporel correspondant à une phase spectrale variant aléatoirement : l'émission lumineuse est continue. Ainsi, une source lumineuse ayant un spectre très large, compatible avec des durées femtosecondes ou attosecondes, peut émettre de manière continue. La mesure de la phase spectrale est donc cruciale pour effectuer une caractérisation temporelle d'une impulsion lumineuse.

Nous avons considéré à titre d'exemple l'influence de la phase spectrale sur un spectre gaussien. Dans le cas de la génération d'harmoniques, le spectre a une structure plus complexe : il s'agit d'un peigne de pics harmoniques, séparés par des zones d'amplitude spectrale nulle. La transformée de Fourier d'un tel spectre affecté d'une phase spectrale nulle constitue un train d'impulsions attosecondes (figure 1.8). Les harmoniques étant séparées de  $2\omega_0$ , les impulsions le sont de  $T_0/2$ . La durée de chaque impulsion est inversement proportionnelle au nombre  $N$  d'harmoniques superposées, et la durée du train dépend des largeurs spectrales individuelles  $\delta\omega$  des harmoniques. Afin de simplifier l'étude, nous séparons donc le problème de la caractérisation de la phase spectrale harmonique en deux échelles de fréquences, auxquelles correspondent les deux échelles de temps. Nous nous intéressons d'abord à la phase relative entre les différentes harmoniques et à leur superposition dans le domaine attoseconde ; nous considérerons ensuite chaque raie harmonique, ce qui revient à caractériser la structure femtoseconde du rayonnement.

### 1.3.2 Structure attoseconde

Les études semi-classiques et quantiques de la génération d'harmoniques semblent indiquer l'existence d'une structure attoseconde dans le rayonnement émis. En effet, la recombinaison radiative se produit lors du retour de l'électron sur le noyau, qui a lieu sur une durée sub-femtoseconde pour chaque famille de trajectoires (figure 1.4). Dans

le domaine spectral, le rayonnement émis est très large bande (jusqu'à plusieurs centaines d'eV ((Chang et al., 1997; Schnurer et al., 1998; Seres et al., 2005)), et est bien compatible avec des durées attosecondes (Farkas and Toth, 1992; Harris et al., 1993). Sa structure temporelle dépend des phases spectrales relatives des harmoniques, dont nous analysons l'influence dans le premier paragraphe.

### 1.3.2.1 Phases relatives et instants d'émission

Nous considérons dans ce paragraphe la superposition de  $N$  harmoniques discrètes définies par leurs amplitudes spectrales  $A_q$  et leurs phases spectrales  $\varphi_q$ . Cette discrétisation revient à ignorer les effets dus à la durée finie du laser générateur, c'est à dire la structure femtoseconde de l'émission. Le profil temporel résultant est obtenu par l'équation suivante :

$$I(t) = \left| \sum_{q=1}^N A_q \exp(-i\omega_q t + i\varphi_q) \right|^2 \quad (1.25)$$

Nous étudions le comportement de ce profil pour différentes relations de phase entre harmoniques.

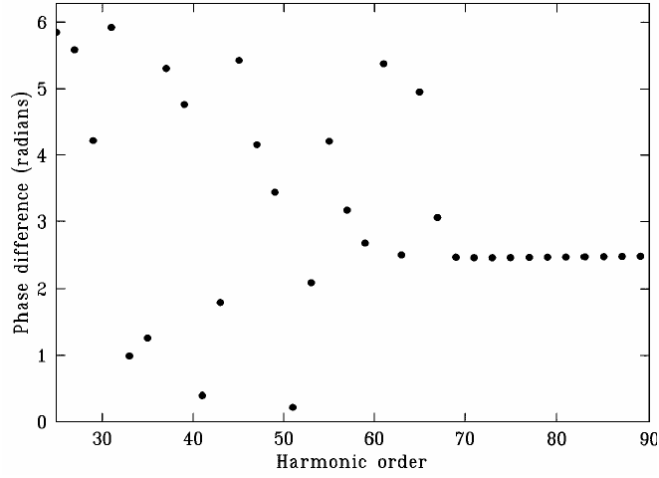
(i) Dans le cas où la relation de phase entre harmoniques est constante :  $\varphi_q = \varphi_0$ , le terme de phase peut être mis en facteur de la somme, et l'on obtient  $I(t) \propto \frac{\sin^2(N\omega_0 t)}{\sin^2(\omega_0 t)}$ . Le profil temporel de  $N$  harmoniques *en phase* est constitué d'impulsions attosecondes séparées d'une demi période laser, et de durée inversement proportionnelle à  $N$  :  $\tau_N = T_0/2N$ . Etant donné qu'il est possible de générer plusieurs centaines d'harmoniques, elles pourraient permettre si elles étaient en phase d'obtenir des impulsions de durée inférieure à la dizaine d'attosecondes.

(ii) Considérons à présent le cas d'une relation de phase entre harmoniques linéaire de pente  $t_e$  :  $\varphi_q = \omega_q t_e$ . Alors on peut réécrire l'équation 1.25 en factorisant  $\omega_q$  pour obtenir :

$$I(t) = \left| \sum_{q=1}^N A_q \exp(-i\omega_q(t - t_e)) \right|^2 \quad (1.26)$$

Ce profil temporel est celui de  $N$  harmoniques en phase, décalé temporellement de  $t_e$ . La pente de la relation de phase entre harmoniques est donc l'instant à l'intérieur du demi-cycle optique auquel l'impulsion attoseconde est maximale, que nous appelons l'instant d'émission des harmoniques :  $t_e = \partial\varphi/\partial\omega$

(iii) Cette définition de l'instant d'émission est généralisable au cas où la phase n'est pas linéaire.  $t_e(\omega_q)$  est alors le retard de groupe associé à la fréquence  $\omega_q$ . L'instant d'émission dépend de l'ordre harmonique, c'est à dire que les harmoniques ne sont pas synchronisées à l'échelle attoseconde. Le profil temporel ne peut être intuité, et dépend



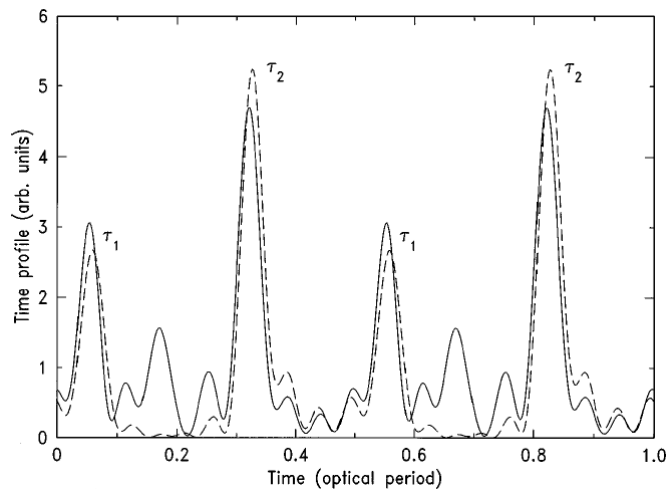
**Fig. 1.9:** Différence de phase entre deux harmoniques consécutives en fonction de l'ordre harmonique, en générant dans le néon à  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (calcul dans l'approximation du champ fort). D'après Antoine et al. (1996b).

du profil exact des phases relatives, de la même manière que le profil temporel d'une impulsion de spectre gaussien à phase spectrale non linéaire dépend du détail de cette phase (figure 1.7).

Ainsi, alors que la largeur des spectres harmoniques peut supporter des durées de quelques attosecondes, l'émission pourrait aussi se révéler continue si les phases relatives des harmoniques étaient aléatoires. Une étude théorique de ces phases s'impose donc avant de pouvoir conclure sur la structure temporelle du rayonnement.

### 1.3.2.2 Etude théorique quantique

Philippe Antoine *et al.* ont effectué en 1996 une étude de la structure attoseconde du rayonnement harmonique dans le cadre de l'approximation du champ fort, à partir du modèle de M. Lewenstein (Antoine et al., 1996b, 1997). Afin d'obtenir le profil temporel de l'émission harmonique, il faut calculer le dipôle harmonique donné par la formule 1.17. On peut ensuite calculer le spectre harmonique complexe par transformée de Fourier de cette quantité. Les résultats obtenus dans Antoine et al. (1996b) sont présentés sur la figure 1.9. La grandeur représentée est la différence de phase entre deux harmoniques successives. Elle est donc approximativement égale à la dérivée de la phase spectrale. Pour les harmoniques les plus élevées (69 à 89), cette quantité est constante. Cela signifie que ces harmoniques sont en phase, c'est à dire parfaitement synchronisées. Cette zone correspond à la coupure, dont la sélection spectrale peut donc donner naissance à un train d'impulsions attosecondes régulières, limitées par transformée de Fourier. En revanche, dans le plateau la différence de phase semble



**Fig. 1.10:** Train d'impulsions attosecondes obtenu par superposition de 11 harmoniques du plateau (41 à 61). Les tirets représentent le profil obtenu en restreignant l'intégration aux temps de retour inférieurs au cycle optique. D'après [Antoine et al. \(1996b\)](#).

varier aléatoirement en fonction de l'ordre, ce qui laisse à penser que l'émission est temporellement continue.

Le calcul du profil temporel de la superposition de 11 harmoniques de la fin du plateau révèle néanmoins une certaine structure attoseconde (figure 1.10). On distingue principalement deux pics par demi-cycle optique. En restreignant l'intégration dans 1.17 aux temps de retour inférieurs au cycle optique, on élimine les rebonds supplémentaires, qui sont dus aux recombinaisons électroniques de trajectoires plus longues et moins probables. Les deux pics sont centrés en 0.55 et 0.83 cycles optiques, c'est à dire autour de 1500 et 2200 as. Antoine *et al.* ont montré que ces temps correspondent aux recombinaisons électroniques menant à l'émission des harmoniques de la fin du plateau, pour les trajectoires courtes et longues respectivement. Il s'agit d'un comportement générique qui ne dépend pas de l'éclairement laser ou de la nature du gaz. Ainsi, même si le calcul que nous avons présenté sur la figure 1.5 n'est pas effectué dans les mêmes conditions, nous pouvons vérifier que les valeurs moyennes des instants d'émission sur la fin du plateau correspondent aux deux impulsions attosecondes présentes sur le profil temporel.

Les deux pics observés peuvent donc être attribués aux deux familles de trajectoires électroniques. La structure attoseconde du rayonnement harmonique est régie par la dynamique du paquet d'ondes électronique dans le continuum à l'échelle du cycle optique. Aux différentes trajectoires classiques menant à l'émission d'un groupe d'harmoniques donné sont associés des parcours dans le continuum, et donc des instants de recombinaison, très différents. L'approche qualitative et classique présentée sur la figure 1.4 se voit ici validée par le calcul rigoureux du profil temporel harmonique.

Il peut apparaître surprenant que le profil temporel soit si régulier alors que les phases relatives des harmoniques semblent aléatoires. En fait, étant donné que deux familles de trajectoires contribuent à l'émission de chaque ordre, la phase d'une harmonique est, d'après l'équation 1.21 :

$$\text{Arg}(x(\omega_q)) = \text{Arg}(A_q^1 e^{i\varphi_q^1} + A_q^2 e^{i\varphi_q^2}) \quad (1.27)$$

Ainsi, même si l'argument de chaque terme a un comportement régulier en fonction de l'ordre, la phase de la somme des termes peut varier très brutalement et de manière apparemment aléatoire.

### 1.3.3 Structure femtoseconde

La structure femtoseconde de l'émission harmonique est déterminée par l'amplitude spectrale  $A_q(\omega)$  et la phase spectrale  $\varphi_q(\omega)$  individuelle de chaque harmonique, où  $\omega$  varie autour de  $\omega_q$ . La durée d'émission d'une harmonique donnée est liée à la durée finie de l'impulsion laser fondamentale, et il convient donc d'analyser l'effet de la variation temporelle de l'éclairement sur la phase du dipôle dans le mécanisme de génération.

#### 1.3.3.1 Dépendance en éclairement de la phase du dipôle

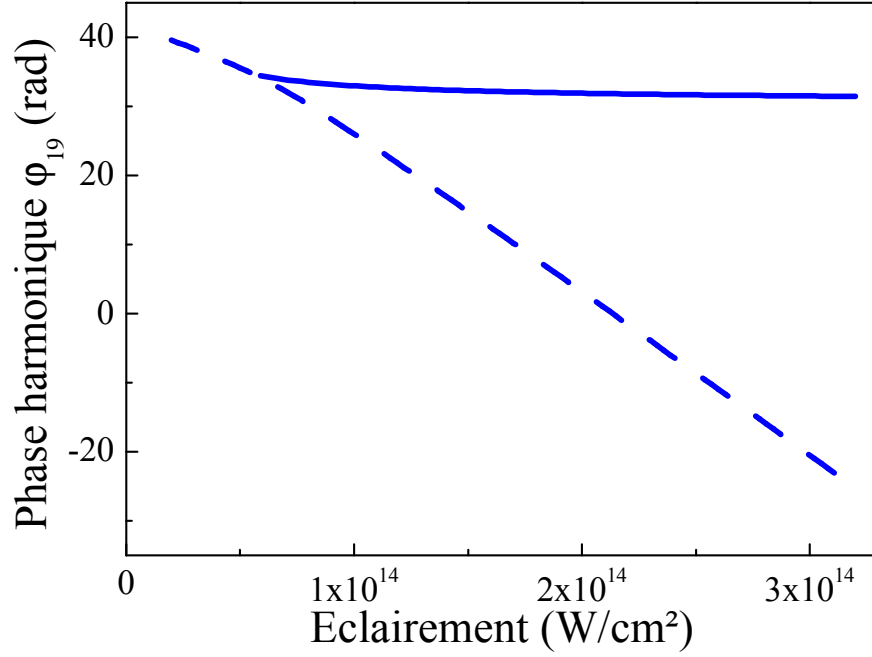
La phase de la contribution de la trajectoire d'indice  $j$  à l'harmonique  $q$  est donnée, d'après la formule 1.15, par :

$$\varphi_q^j = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[ \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2}{2} + I_p \right] dt \quad (1.28)$$

Le second terme de la somme est l'intégrale d'action, qui représente la phase accumulée par le paquet d'ondes électronique le long de la trajectoire considérée. Elle dépend de l'éclairement laser via le potentiel vecteur  $\mathbf{A}(t)$ . La figure 1.11 présente le calcul de la phase de l'harmonique 19 générée dans l'argon en fonction de  $I$  effectué par Katalin Varjú à Lund (Varju et al., 2005). Lorsque l'éclairement est de l'ordre de quelques  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, l'harmonique 19 est dans la coupure et les deux trajectoires ne sont pas distinguables. A éclairement plus important, elle se trouve dans le plateau et les trajectoires courtes et longues sont séparées. La variation de la phase avec l'éclairement est alors approximativement linéaire :

$$\varphi_q^j = -\alpha_q^j I \quad (1.29)$$

La valeur de la phase et sa dépendance  $\alpha_q$  avec l'éclairement sont beaucoup plus importants sur les trajectoires longues.



**Fig. 1.11:** Phase de l'harmonique 19 générée dans l'argon en fonction de l'éclairement. La phase correspondant aux trajectoires courtes (longues) est représentée en traits continus (tirets).

La figure 1.12 présente l'évolution de  $\alpha_q = -\frac{\partial \varphi_q}{\partial I}$  en fonction de l'ordre harmonique dans l'argon, à un éclairement de  $1.5 \times 10^{14}$  W/cm².  $\alpha_q$  est très faible sur les trajectoires courtes pour les ordres bas, et augmente au voisinage de la coupure pour tendre vers  $12 \times 10^{-14}$  rad.cm²/W. Pour les trajectoires longues,  $\alpha_q$  décroît d'environ  $25 \times 10^{-14}$  rad.cm²/W au début du plateau à  $12 \times 10^{-14}$  rad.cm²/W dans la coupure (Gaarde and Schafer, 2002a).

Afin de donner une interprétation physique au comportement de la phase du dipôle, nous en faisons une étude basée sur le modèle semi-classique présenté au début du chapitre. Nous cherchons à évaluer classiquement la dérivée de la phase  $\varphi_q$  par rapport à l'éclairement. Le second terme de 1.28 est l'intégrale de l'énergie cinétique de l'électron sur son orbite :

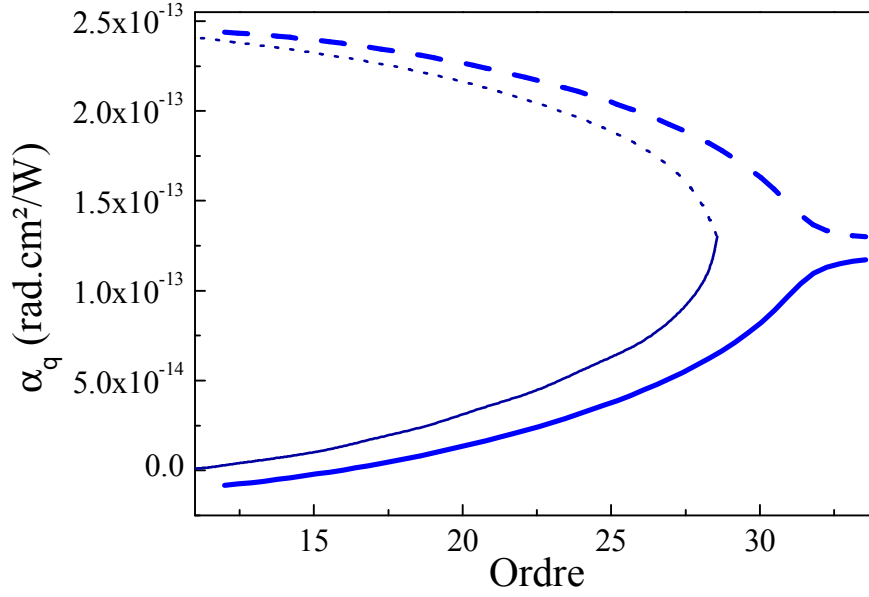
$$S' = \int_{t_i}^{t_r} \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A})^2}{2} dt = \int_{t_i}^{t_r} \frac{\mathbf{v}^2}{2} dt = \int_{t_i}^{t_r} E_c dt \quad (1.30)$$

Nous considérons que les variations avec l'éclairement des deux autres termes de la phase,  $\omega_q t_r$  et  $\int_{t_i}^{t_r} I_p dt$ , sont négligeables devant celle de  $S'$  :

$$\frac{\partial \varphi_q}{\partial I} \approx \frac{\partial S'}{\partial I} \quad (1.31)$$

De plus, l'étude à partir du modèle de Lewenstein présentée ci-dessus révélant une





**Fig. 1.12:** Evolution de  $\alpha_q = -\frac{\partial \varphi_q}{\partial I}$  en fonction de l'ordre harmonique. Les trajectoires courtes sont en trait continu bleu et les longues en tirets. Les lignes fines sont les résultats du calcul classique  $\alpha_q^{class}$ .

bonne linéarité de la phase  $\varphi_q$  en fonction de  $I$ , nous faisons l'approximation suivante :

$$\frac{\partial \varphi_q}{\partial I} \approx \frac{S'}{I} \quad (1.32)$$

Nous pouvons alors évaluer cette quantité classiquement en calculant l'intégrale  $S'$  pour chaque trajectoire présentée sur la figure 1.3, et en déduire  $\alpha_q^{class} = -S'/I$  (figure 1.12).

La comparaison du calcul classique approché et du calcul quantique révèle un accord remarquable pour les deux familles de trajectoires. L'analyse extrêmement simple que nous avons présentée pour évaluer  $\alpha_q^{class}$  peut donc être utilisée avec une précision satisfaisante par rapport au modèle de Lewenstein. Ce dernier permet néanmoins d'accéder au comportement des harmoniques de la coupure, dont la position est, comme sur nous l'avons déjà vu sur la figure 1.5, légèrement plus élevée dans le cas quantique. La validité de l'analyse classique approchée indique que la contribution principale dépendant de l'éclairement dans la phase harmonique provient de l'accumulation de l'énergie cinétique durant le trajet dans le continuum.

### 1.3.3.2 Dérive de fréquence harmonique

Lorsque l'on utilise une impulsion infrarouge de durée finie pour générer des harmoniques d'ordre élevé, l'évolution temporelle de l'éclairement laser implique une modification de la phase du dipôle. Nous négligeons les effets non-adiabatiques, qui peuvent

avoir lieu lorsque l'amplitude du champ laser varie fortement d'un cycle optique au suivant, c'est à dire avec des impulsions constituées de seulement quelques cycles. Cela revient à associer à chaque instant la valeur de la phase correspondant à l'éclairement instantané  $\varphi_q^j(t) = -\alpha_q^j I(t)$ .

Nous supposons que l'impulsion infrarouge de génération a un profil temporel gaussien de durée  $\tau_0$  (largeur à mi-hauteur en intensité) et est limitée par transformée de Fourier :

$$I(t) = I_0 e^{-4 \ln(2) t^2 / \tau_0^2} \quad (1.33)$$

Les harmoniques étant générées au voisinage du maximum de l'impulsion laser, l'éclairement a un profil approximativement parabolique. La phase temporelle comporte un terme d'ordre deux :  $-b_q^j t^2 / 2$ , avec

$$b_q^j = -\frac{\partial^2 \varphi_q^j}{\partial t^2} = -\frac{\partial \varphi_q^j}{\partial I} \frac{\partial^2 I}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 \varphi_q^j}{\partial I^2} \left( \frac{\partial I}{\partial t} \right)^2 \approx \alpha_q^j \frac{\partial^2 I}{\partial t^2} \approx -8 \ln(2) \alpha_q^j \frac{I_0}{\tau_0^2}, \quad (1.34)$$

L'émission femtoseconde harmonique n'est donc pas limitée par transformée de Fourier, mais présente une dérive de fréquence ou *chirp* harmonique proportionnelle à la dérivée  $\alpha_q$  de la phase par rapport à l'éclairement (Salieres et al., 1995). A cette phase temporelle quadratique correspond comme nous l'avons vu sur la figure 1.7 une phase spectrale quadratique.  $\alpha_q$  étant positif, la dérive de fréquence harmonique est négative, c'est à dire que les fréquences les plus élevées sont émises avant les plus basses.

Comme nous l'a montré l'analyse classique du comportement de  $\alpha_q$ , la dérive de fréquence est approximativement proportionnelle à l'énergie cinétique accumulée dans le continuum. Sa variation avec l'ordre harmonique (figure 1.12) suit celle de l'amplitude du mouvement classique de l'électron dans le continuum (figure 1.3) : plus la trajectoire est longue, plus la dérive de fréquence harmonique est importante. Celle-ci est donc une signature directe de la dynamique électronique dans le processus de génération, et peut même être reliée au temps d'excursion  $\tau$  des électrons (Salières et al., 2001).

Depuis les premières prédictions de l'existence d'une dérive de fréquence harmonique (Salieres et al., 1995), de nombreuses études théoriques ont été menées sur ce sujet (Kan et al., 1995; Schafer and Kulander, 1997; Gaarde, 2001; Kim et al., 2001). Nous le verrons au chapitre 2 comment sa mesure peut être effectuée. La dépendance en éclairement différente de la phase harmonique est également à l'origine de propriétés macroscopiques différentes associées aux deux familles de trajectoires. Ces effets seront discutés dans le chapitre 4.

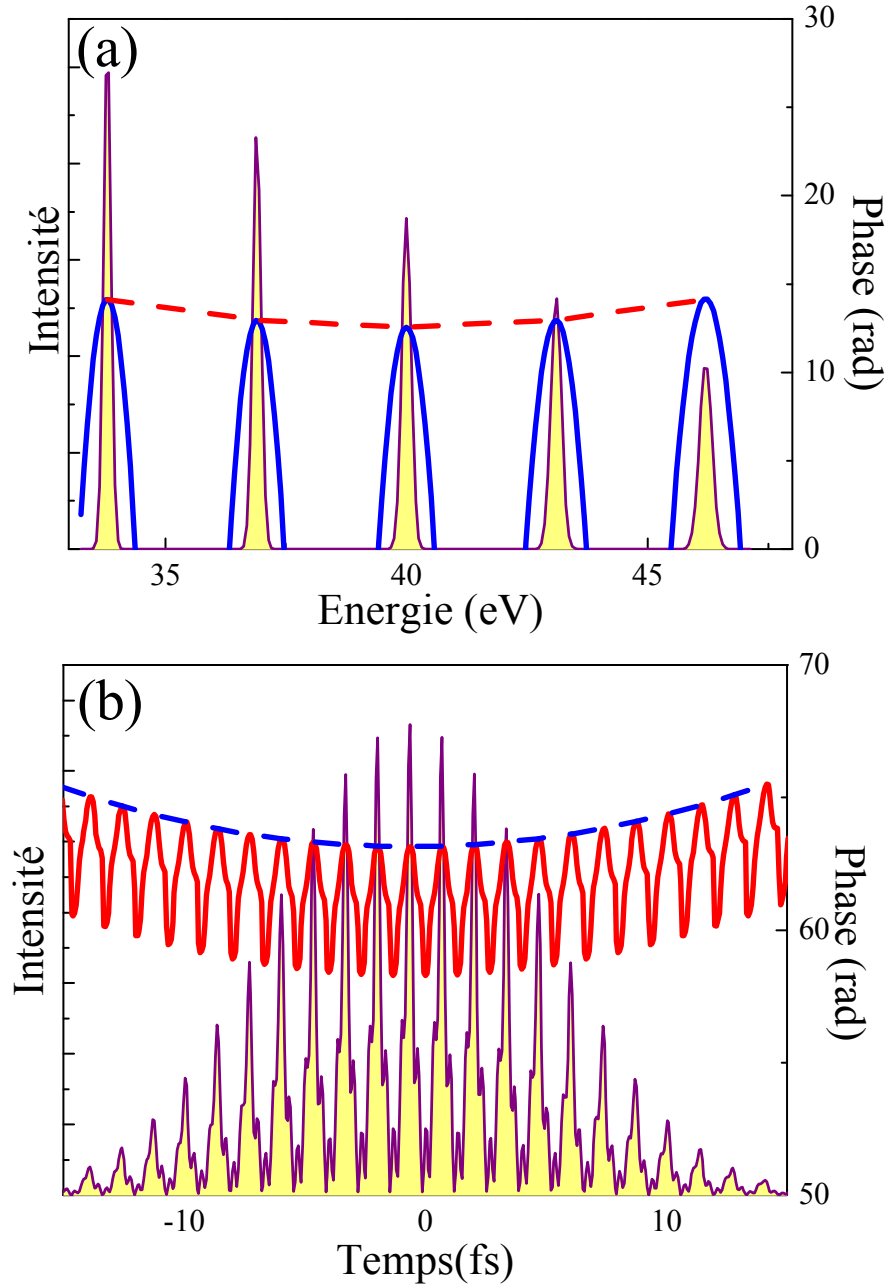
### 1.3.4 Conclusion

La caractérisation temporelle complète de la génération d'harmoniques nécessite de mesurer les propriétés du rayonnement à la fois à l'échelle femtoseconde et attoseconde (figure 1.13).

Il faut d'une part déterminer la phase spectrale individuelle de chaque harmonique  $\varphi_q(\omega)$  autour de  $\omega = \omega_q$  (en bleu sur la figure 1.13(a)). Elle est caractéristique de l'excursion des électrons dans le continuum, et conditionne les amplitudes et phases temporelles de l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes (phase en tirets bleus sur la figure 1.13(b)).

D'autre part, il est nécessaire de caractériser la phase relative moyenne d'une harmonique à l'autre (symbolisée par les tirets rouges sur la figure 1.13(a)). Elle conditionne la structure attoseconde du train (phase en rouge sur la figure 1.13(b)), et est le reflet des recombinaisons électroniques à l'intérieur du cycle optique.

Nous effectuons cette caractérisation en deux étapes, d'abord au chapitre suivant avec une mesure des phases harmoniques individuelles, puis aux chapitres 3 et 4 avec une détermination des phases relatives. Le chapitre 5 propose une méthode pour accéder directement à l'ensemble de ces informations.



**Fig. 1.13:** (a) Principe de la caractérisation complète spectrale d'un ensemble d'harmoniques. Les phases relatives sont en rouge et les phases individuelles en bleu. (b) Train d'impulsions attosecondes correspondant. La phase de l'enveloppe est en bleu, et la phase de chaque impulsion en rouge.



## Chapitre 2

# Mesure de la phase harmonique individuelle : SPIDER

## Harmonique

Nous nous intéressons dans ce chapitre à la caractérisation temporelle à l'échelle femto-seconde d'harmoniques individuelles, et commençons par une brève revue des techniques existantes. Les harmoniques étant situées dans une gamme de longueurs d'ondes s'étendant de l'ultraviolet aux X mous, la transposition directe des techniques habituellement employées dans le domaine optique pour caractériser les impulsions femtoseconde n'est pas aisée, notamment en raison de la faible efficacité des processus non-linéaires dans cette zone. Les expérimentateurs ont donc dû développer des techniques alternatives propres à cette gamme de fréquences.

Les premières mesures de durée des harmoniques qui ont été effectuées reposaient sur la corrélation croisée de l'impulsion harmonique et d'une impulsion infrarouge d'habillage. En focalisant les harmoniques dans un jet de gaz en présence d'une faible impulsion infrarouge, on produit de la photoionisation à deux photons et deux couleurs. Il apparaît sur le spectre de photoélectrons des satellites entre les harmoniques, qui correspondent à l'absorption d'un photon harmonique et l'absorption ou l'émission d'un photon infrarouge (voir chapitre 3). En mesurant le signal du pic satellite en fonction du délai entre UVX et infrarouge, on obtient un signal de corrélation croisée des deux impulsions, dont on peut déduire la durée approximative de l'harmonique connaissant celle de l'infrarouge ([Schins et al., 1994](#); [Glover et al., 1996](#); [Bouhal et al., 1997](#)).

Ce principe a été considérablement amélioré par l'équipe de Lund ([Norin et al., 2002](#); [Lopez-Martens et al., 2004b](#); [Mauritsson et al., 2004](#)). En utilisant pour l'habillage une impulsion infrarouge plus brève que l'impulsion harmonique, on peut avoir accès à la dérive de fréquence de l'harmonique considérée. Cette donnée est essentielle pour ca-



**Fig. 2.1:** Spectres cannelés en lumière blanche, pour des différences de marches croissantes de gauche à droite. D'après Nantes (2005).

racteriser la génération d'harmoniques puisque, comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, elle reflète la dynamique électronique à l'échelle femtoseconde dans le processus de génération.

Une autre extension de ces mesures a consisté en l'analyse des données par un algorithme FROG (voir chapitre 5), qui fournit le profil temporel complet de l'impulsion harmonique, en amplitude et en phase (Sekikawa et al., 2002, 2003). Toutefois, cette expérience a été réalisée dans des conditions de forte ionisation du milieu générateur, ce qui rend l'interprétation des résultats plus difficile. De plus, elle ne peut caractériser que les harmoniques générées par la fréquence double du laser, c'est à dire les harmoniques paires du fondamental.

Toutes ces techniques sont basées sur des mesures de spectroscopie de photoélectrons, ce qui oblige à sommer plusieurs tirs pour avoir un spectre, et nécessite un dispositif expérimental lourd. De plus, il faut mesurer ces spectres en fonction du délai UVX-IR, ce qui allonge considérablement la durée de mesure. Les impulsions obtenues sont donc moyennées sur plusieurs centaines de tirs. Nous avons donc réfléchi à la mise en place d'une technique de caractérisation *complète* d'impulsions UVX, qui permette des mesures *monocoup*, et qui soit *simple* à mettre en oeuvre. Une telle technique existe dans le domaine optique : l'interférométrie de phase spectrale pour la reconstruction directe du champ électrique, *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction* (SPIDER, Iaconis and Walmsley (1998)).

## 2.1 Caractérisation complète d'impulsions par interférométrie fréquentielle

### 2.1.1 Interférométrie fréquentielle

Lorsque l'on éclaire un interféromètre de Michelson réglé en lame d'air par une lumière blanche, on observe au voisinage du contact optique du "blanc d'ordre supérieur" : la lumière apparaît blanche, mais son analyse spectrale révèle des cannelures (figure 2.1). Chaque composante spectrale est le fruit d'une interférence, qui est constructive si la différence de marche entre les deux faisceaux est un multiple entier de la longueur d'onde considérée, c'est à dire si  $c\tau = n\lambda_n$ , ou encore  $\omega_n = n2\pi/\tau$  ( $\tau$  étant le retard introduit dans l'interféromètre). Elle est destructive dans le cas où le multiple est demi-entier, et on observe donc des cannelures sur le spectre, distantes de  $2\pi/\tau$ . Sur la figure 2.1, la différence de marche dans l'interféromètre augmente d'une image à l'autre, de gauche à droite, et l'interfrange spectral diminue donc.

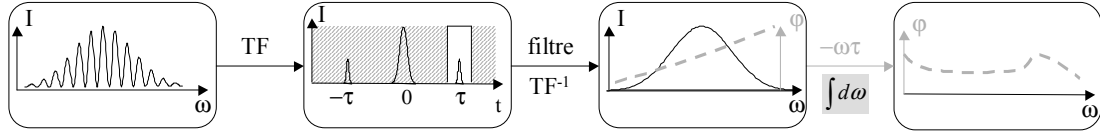
L'interférométrie fréquentielle est une extension de cette observation dans le domaine femtoseconde. Considérons une impulsion lumineuse  $E(\omega) = |E(\omega)|e^{i\varphi(\omega)}$ , dont on crée une réplique décalée temporellement d'un retard  $\tau$ . Mathématiquement, ce décalage correspond dans le domaine temporel à une convolution par une fonction  $\delta_\tau$ . Dans le domaine spectral, il est équivalent à la multiplication par un facteur  $F(\delta_\tau) = e^{i\omega\tau}$ , c'est à dire l'ajout d'un terme de phase linéaire à la phase spectrale. Le spectre du champ électrique total, somme des deux impulsions décalées, s'écrit :  $S(\omega) = |E(\omega) + E(\omega)e^{i\omega\tau}|^2 = 2|E(\omega)|^2(1 + \cos(\omega\tau))$ . Il présente une modulation sinusoidale, et est donc constitué de franges séparées de  $2\pi/\tau$ , ce qui correspond aux cannelures observées en lumière blanche.

Cette forme est analogue à une figure d'interférence spatiale obtenue en superposant les radiations lumineuses produites par deux sources identiques décalées spatialement (trous d'Young). Le contraste d'une telle figure reflète la cohérence mutuelle des deux point sources. De manière analogue, la visibilité des franges d'une figure d'interférence spectrale permet de déterminer le degré de cohérence mutuelle des deux répliques temporelles.

### 2.1.2 SPIDER Infrarouge

L'interférométrie spectrale de deux répliques d'une impulsion ne fournit pas d'information sur la durée sur cette impulsion. Le SPIDER est une extension de cette technique qui permet de déterminer la phase spectrale de l'impulsion considérée. Pour cela, on crée deux répliques de l'impulsion, décalées temporellement de  $\tau$ , et on introduit de plus





**Fig. 2.2:** Traitement du signal SPIDER

un décalage spectral de  $\Omega$  sur l'une des répliques. Ainsi, on dispose d'une impulsion initiale  $E(\omega)$ , et de sa réplique  $E(\omega - \Omega)e^{i\omega\tau}$ . Le spectre correspondant à la superposition de ces impulsions est

$$S(\omega) = |E(\omega)|^2 + |E(\omega - \Omega)|^2 + 2|E(\omega)||E(\omega - \Omega)|\cos(\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) + \omega\tau).$$

Les franges d'interférences sont toujours présentes, mais leur position est modifiée par la différence de phase spectrale entre les deux répliques. Le principe du traitement du signal obtenu est présenté sur la figure 2.2. En effectuant la transformée de Fourier du spectre, on obtient une composante continue et un pic centré autour de  $\tau$  correspondant au cosinus. On filtre alors ce pic et effectue une transformée de Fourier inverse (deuxième étape sur la figure). La mesure de la phase du signal ainsi obtenu donne  $\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) + \omega\tau$ . En lui soustrayant le terme linéaire  $\omega\tau$ , qui est connu, on obtient  $\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) \approx \Omega \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}$ . Connaissant le décalage spectral  $\Omega$ , on peut alors par intégration (troisième étape) reconstituer la phase spectrale  $\varphi(\omega)$  de l'impulsion initiale, moyennée sur une largeur  $\Omega$ , et à une constante additive près (Iaconis and Walmsley, 1998).

La technique SPIDER présente de nombreux avantages. Elle fournit une caractérisation complète avec un dispositif relativement simple à mettre en oeuvre dans le visible et le proche infrarouge. Elle permet d'effectuer des caractérisations monocoup au kilohertz (Kornelis et al., 2003), puisque la mesure repose sur l'acquisition d'un seul spectre (le spectre de l'impulsion unique ayant été enregistré au préalable, ou étant enregistré simultanément sur un second spectromètre). De plus, l'algorithme de reconstruction est simple et rapide et peut donc être utilisé en temps réel jusqu'à plusieurs dizaines de hertz. Enfin, la mesure est très robuste, même en présence de bruits importants (Anderson et al., 2000). Le point faible essentiel de cette méthode est son incapacité à caractériser des impulsions dont les spectres comportent des points de valeur nulle, et par conséquent des trains d'impulsions ou des impulsions multiples. En effet, la reconstruction de la phase se fait par concaténation ou intégration, et si le spectre est nul sur un intervalle de fréquence, alors il est impossible de relier les phases de part et d'autre de cet intervalle.

Techniquement, le point critique pour la réalisation d'un SPIDER est le décalage spectral d'une impulsion. Il peut être effectué dans le domaine optique par somme de fréquences. C'est le cas sur le dispositif que nous avons utilisé sur le laser LUCA du SPAM (figure 2.3). Le faisceau à caractériser est spatialement séparé en deux parties. L'une

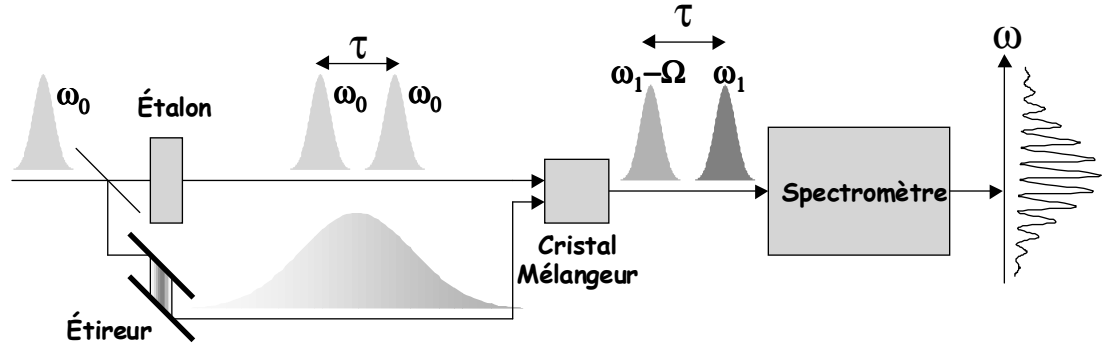


Fig. 2.3: Mesure SPIDER IR

est étirée temporellement, de telle sorte que ses différentes composantes spectrales sont étalées dans le temps. Sur l'autre voie, on crée deux répliques séparées temporellement de  $\tau$ . On recombine alors ces deux faisceaux dans un cristal non-linéaire qui réalise une somme de fréquences. Les deux répliques temporelles ne voient pas la même zone de l'impulsion étirée, et donnent donc naissance dans le cristal à des signaux de fréquences différentes. On a ainsi créé deux répliques de l'impulsion initiale, décalées temporellement et spectralement. Il suffit d'enregistrer leur spectre pour effectuer la mesure.

Une alternative à l'utilisation de cristaux non-linéaires est d'induire le décalage spectral entre les deux répliques temporelles par modulation de la phase temporelle. Une phase temporelle linéaire correspond à une multiplication du champ par une fonction  $e^{i\Omega t}$ , où  $\Omega$  est la pente de la modulation. Dans le domaine spectral, elle est donc équivalente à une convolution par une fonction  $F(e^{i\Omega t}) = \delta_{\Omega}$ , qui produit une translation du spectre de la quantité  $\Omega$ . L'utilisation de modulateurs de phase ultrarapides, basés sur des effets electro-optiques par exemple, permet donc de réaliser des mesures SPIDER avec uniquement des éléments linéaires, mais dont l'un au moins est non-stationnaire ([Dorrer and Kang, 2003](#)).

### 2.1.3 Transposition dans l'UVX

La difficulté principale pour réaliser une mesure SPIDER d'harmoniques d'ordre élevé est de décaler spectralement une impulsion harmonique, dont la longueur d'onde est dans l'UVX. Il est impossible d'employer pour cela les cristaux non-linéaires couramment utilisés dans l'infrarouge. Ils n'ont pas d'équivalent dans le domaine UVX car l'efficacité des processus non-linéaires chute rapidement lorsque la longueur d'onde diminue. L'alternative consistant à moduler la phase temporelle d'une impulsion harmonique n'est pas non plus réalisable aisément.

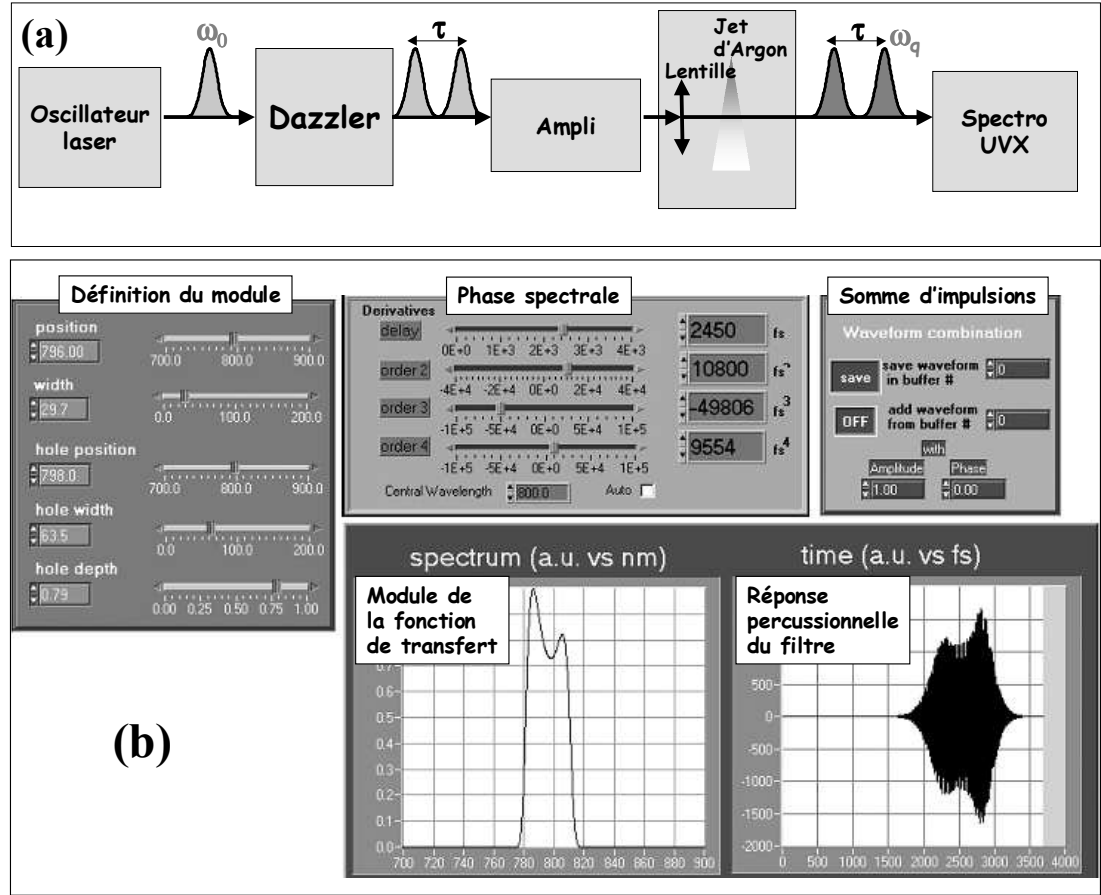
Une solution intéressante est d'utiliser des paquets d'ondes électroniques comme intermédiaire dans la chaîne de mesure. En photoionisant un gaz avec un rayonnement UVX, on peut produire un paquet d'électrons dont la structure temporelle reflète celle de l'impulsion UVX, et dont on peut mesurer le spectre avec un spectromètre à temps de vol. Comme nous le verrons plus loin, l'étape de photoionisation peut être modifiée par la présence d'un champ infrarouge perturbateur. Dans certaines conditions, ce champ agit comme un modulateur de la phase temporelle des électrons (Cf chapitre 5). Si l'impulsion à caractériser a une durée courte devant le cycle optique, l'oscillation du champ infrarouge peut être utilisée pour induire un décalage spectral (Quéré et al., 2003). Dans le cas où l'impulsion UVX est bien plus longue que le cycle optique, c'est l'enveloppe du champ infrarouge qui induit la modulation de phase (Mauritsson et al., 2003). Le problème principal de cette méthode est qu'elle repose sur des mesures de cannelures sur des spectres de photoélectrons, dont la résolution spectrale peut s'avérer insuffisante en pratique. De plus, la génération de deux répliques de l'impulsion UVX est techniquement difficile.

Nous avons donc réfléchi à la possibilité d'effectuer une mesure de type SPIDER en utilisant un dispositif tout-optique. Dans notre expérience, nous mettons à profit la cohérence du processus de génération d'harmoniques. Nous produisons deux impulsions infrarouges décalées temporellement et spectralement, et les utilisons pour générer des harmoniques d'ordre élevé. Il est alors possible, dans certaines conditions expérimentales, d'obtenir deux impulsions harmoniques identiques, mais décalées elles aussi spectralement et temporellement. Le spectre cannelé correspondant à ce couple d'impulsion est directement le spectre SPIDER nécessaire à la caractérisation de l'harmonique considérée (Mairesse et al., 2005).

## 2.2 Interférences spectrales avec des harmoniques

La technique SPIDER reposant sur une mesure d'interférométrie spectrale, il faut avant de pouvoir l'implémenter être capable de réaliser un spectre cannelé à partir de deux impulsions harmoniques identiques et décalées temporellement. Pour cela, la première idée est d'utiliser une lame séparatrice et une ligne à retard dans l'UVX. Cependant, la création d'une telle lame dans la gamme de longueur d'ondes correspondant aux harmoniques relativement basses (quelques dizaines de nm) est un véritable défi technologique. Des lames séparatrices ont été réalisées récemment (Delmotte et al., 2002). Pour une utilisation dans un SPIDER, elles présentent l'inconvénient d'être chromatiques et de fonctionner à des longueurs d'ondes courtes (13.9 nm), auxquelles la résolution des spectromètres est moins bonne. Nous avons donc recherché une solution alternative.

En 1999, des mesures d'interférences spectrales d'harmoniques ont ainsi été réalisées à Saclay en contournant ce problème grâce à la cohérence du processus de génération



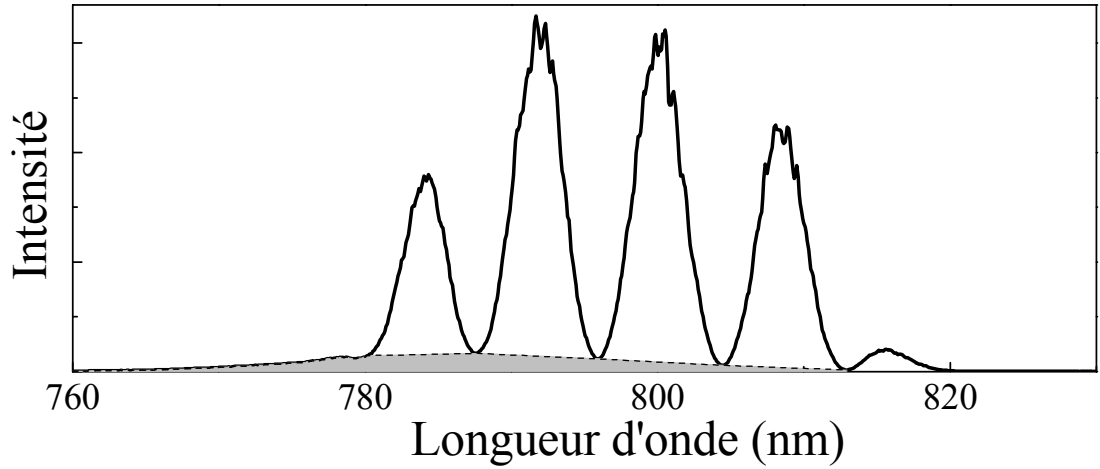
**Fig. 2.4:** (a) Principe de l'utilisation du Dazzler pour produire des interférences spectrales harmoniques. (b) Panneau de contrôle du Dazzler.

(Hergott, 2001; Salieres et al., 1999; Hergott et al., 2002). Ces expériences ont démontré qu'en focalisant dans un jet deux répliques d'une impulsion infrarouge décalées temporellement, on pouvait produire un couple d'impulsions harmoniques ayant le même décalage temporel. L'analyse spectrale du rayonnement UVX révèle une structure de spectre cannelé. Le contraste des franges d'interférence est caractéristique de la cohérence mutuelle des deux impulsions harmoniques. Lorsque l'éclairement laser est faible devant l'éclairement de saturation du gaz de génération, ce contraste peut atteindre 90% (harmonique 11 générée dans l'argon à  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). En revanche, quand la première impulsion laser produit une ionisation trop importante du milieu générateur, la seconde est perturbée par la forte densité d'électrons dans le jet. L'impulsion harmonique produite par la seconde réplique laser est différente, ce qui induit une perte de contraste des franges sur l'interférogramme, ainsi que l'apparition d'asymétries. Néanmoins, en utilisant des éclairagements laser modestes, il est possible de générer deux impulsions harmoniques décalées temporellement, *bloquées en phase*.

Ces mesures ont été le point de départ de notre transposition de la technique SPIDER dans l'UVX. Nous avons utilisé pour cela le dispositif expérimental de la figure 2.4. Pour générer les deux répliques infrarouges, nous utilisons le Dazzler qui se trouve sur la chaîne laser LUCA, en sortie de l'oscillateur. Le Dazzler est un filtre acousto-optique qui permet de mettre en forme une impulsion laser en modulant son amplitude et sa phase spectrale (Tournois, 1997).

La fonction de transfert du filtre appliqué peut être calculée par l'utilisateur et chargée dans le programme du Dazzler, ou définie à partir d'un panneau de contrôle dont la figure 2.4(b) présente une capture d'écran. La fonction de transfert par défaut a un module hypergaussien  $|H(\omega)|$ , dont on peut choisir le centre et la largeur dans le premier panneau. Il est de plus possible de définir une fonction gaussienne  $g(\omega)$  dont on règle la position, la largeur et l'amplitude, et qui permet de "creuser un trou" dans le module de la fonction de transfert totale, défini comme  $|H(\omega)[1 - g(\omega)]|$ . Une telle opération peut permettre d'aplatir le spectre en sortie d'oscillateur en atténuant les fréquences centrales, et donc de l'élargir. Le panneau "Phase spectrale" détermine la correction de phase spectrale à appliquer à l'impulsion. Nous ne modifierons ici que l'ordre 1, c'est à dire le retard. Les termes d'ordre supérieur sont ajustés pour compenser les distorsions de phase dans le reste de la chaîne laser. Le module de la fonction de transfert et la réponse percussionnelle du filtre défini sont représentés sur le panneau du bas. Dans le cas présent, on a appliqué un filtrage centré en 796 nm, et troué en 798 nm. Ces paramètres sont ajustés en temps réel en mesurant le spectre infrarouge des impulsions amplifiées. Le but est ici d'obtenir un spectre symétrique et à profil rectangulaire, comme nous le verrons plus tard. Une fois le profil convenable obtenu, nous enregistrons la fonction de transfert du filtre dans une mémoire tampon, et modifions le retard de l'impulsion. On somme alors la nouvelle fonction de transfert à celle mise en mémoire, ce qui revient à générer la superposition des deux impulsions identiques et décalées temporellement.

Nous avons effectué des mesures d'interférométrie spectrale dans l'infrarouge afin de vérifier que les deux impulsions produites sont parfaitement identiques. Le spectre cannelé de la figure 2.5 correspond à un délai de 250 fs. Le contraste des franges est élevé, mais est détérioré dans la zone de courte longueur d'onde. Cette partie du spectre comporte même une aile qui ne présente aucune cannelure. Cela signifie que les composantes spectrales correspondantes ne sont pas cohérentes d'une réplique à l'autre. Nous attribuons cet effet à la présence d'émission spontanée amplifiée dans la chaîne laser. Ce phénomène produit des composantes spectrales plutôt décalées vers le bleu, faibles, et très fluctuantes en phase, ce qui est cohérent avec nos observations expérimentales. Ainsi, notre spectre est constitué de la superposition d'un spectre cannelé de bon contraste, et d'un spectre continu plus faible, que nous représentons en gris sur la figure. Cet effet n'est pas gênant dans notre dispositif puisque l'émission stimulée amplifiée est trop faible pour perturber la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Un autre effet

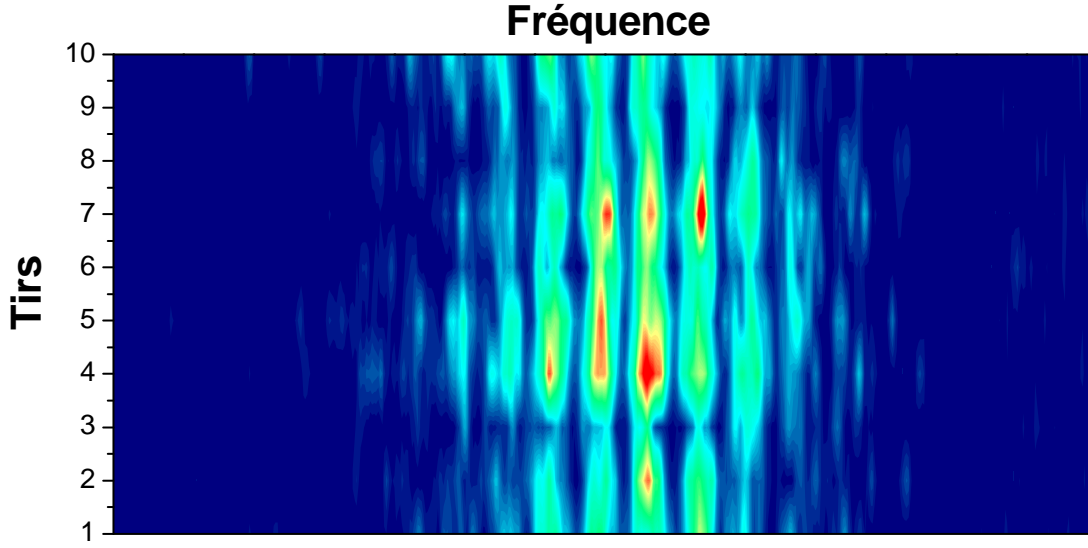


**Fig. 2.5:** Spectre de la superposition de deux impulsions infrarouges identiques décalées de 250 fs, générées par le Dazzler. La zone grise correspond à un fond continu que nous attribuons à l'émission spontanée amplifiée.

secondaire de l'amplification dans la chaîne laser pourrait être l'apparition de répliques temporelles supplémentaires, dues à la saturation dans l'amplificateur. Néanmoins, ces répliques seraient également trop faibles pour produire des harmoniques.

Des mesures de l'interfrange sur le spectre cannelé à 800 nm pour différents délais ont permis de vérifier la précision de la valeur programmée dans le Dazzler. Une caractérisation temporelle directe du couple d'impulsion infrarouges n'a pas été possible puisque comme nous l'avons déjà noté, SPIDER ne permet pas de mesurer des champs électriques dont le spectre comporte des zéros. En atténuant grâce au Dazzler l'une des deux impulsions, on peut diminuer le contraste des franges sur le spectre et parvenir à réaliser une mesure SPIDER. Nous avons vérifié que les deux impulsions générées dans ce cas étaient identiques, au facteur d'atténuation près.

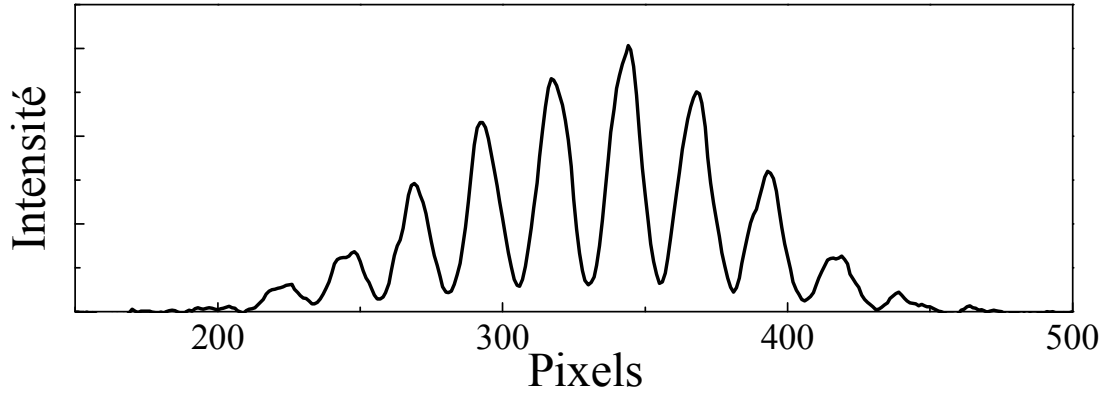
Nous avons alors utilisé deux répliques infrarouges pour générer des harmoniques dans l'argon. Le faisceau laser est focalisé avec une lentille de 1 m de focale à un éclairement de  $9 \times 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$  dans un jet d'argon pulsé de pression 30 Torr. Cette valeur est bien inférieure à l'éclairement de saturation de l'argon, ce qui permet de travailler dans un régime de faible ionisation. Le rayonnement harmonique est analysé avec un spectromètre imageur, constitué d'un miroir torique de 1 m de focale et d'un réseau à pas variable de 700 traits par mm en moyenne, utilisés tous deux en incidence rasante. Le spectre est mesuré par des galettes micro-canaux couplées à un écran phosphore et une caméra CCD. La résolution des galettes est de  $80 \mu\text{m}$ , et elles sont inclinées à 16 degrés d'incidence rasante afin d'améliorer la résolution spatiale du dispositif d'imagerie à  $22 \mu\text{m}$ . Il en résulte une résolution spectrale de 0.01 nm à 73 nm (harmonique 11). Cette résolution décroît lorsque l'ordre harmonique augmente.



**Fig. 2.6:** Mesures monocoups successives de 10 spectres d'interférences fréquentielles de l'harmonique 11, avec un délai de 150 fs.

La figure 2.6 présente une série de 10 spectres obtenus dans ces conditions, avec un délai de 150 fs entre les deux impulsions infrarouges. Chaque spectre correspond à un seul tir laser. Des fluctuations de l'enveloppe spectrale sont visibles, mais la position des franges d'interférences reste inchangée d'un tir à l'autre. Or, cette position est déterminée par la valeur du déphasage entre les deux impulsions harmoniques. Cela signifie que ce déphasage est constant d'un tir à l'autre, malgré les fluctuations d'éclairement laser et de densité atomique dans le jet. Cette propriété illustre la remarquable cohérence du processus de génération d'harmoniques. Elle permet de plus d'effectuer des acquisitions de spectres moyens sans détériorer le contraste des franges. On obtient ainsi des rapports signal-sur-bruit plus importants, comme le montre le spectre de la figure 2.7, qui est une moyenne sur 40 tirs. Le contraste des franges d'interférences est très bon ( $> 80\%$  sur le spectre moyenné), ce qui indique que nous parvenons effectivement à générer deux impulsions harmoniques identiques, décalées temporellement.

Ces spectres cannelés peuvent être utilisés pour effectuer une calibration du spectromètre autour de la fréquence centrale de l'harmonique. L'échelle d'abscisse du spectre mesuré est en pixels de la caméra. Pour passer de la position en pixels  $X$  à la fréquence  $\omega$ , nous effectuons le traitement suivant. En calculant la transformée de Fourier du spectre, on obtient une composante continue et une composante centrée en  $\tau$ . Nous sélectionnons la composante en  $\tau$  et calculons la transformée de Fourier inverse. La phase de cette dernière est  $\varphi = \omega\tau$ , et est connue puisque  $\tau$  est déterminé. Nous disposons ainsi d'une courbe  $\omega = f(X)$  dont on peut avoir une expression analytique en effectuant un ajustement. Cette étape est essentielle pour la suite, car une mauvaise calibration



**Fig. 2.7:** Spectre cannelé de l'harmonique 11 obtenu avec un délai de 150 fs, moyenné sur 40 tirs lasers.

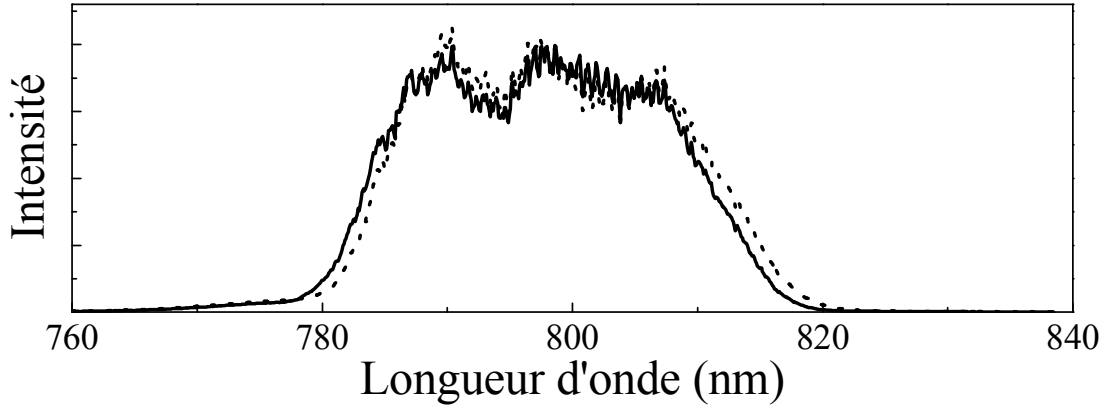
des fréquences introduit des erreurs systématiques dans les mesures SPIDER ([Dorrer, 1999](#)).

## 2.3 Réalisation d'un décalage spectral

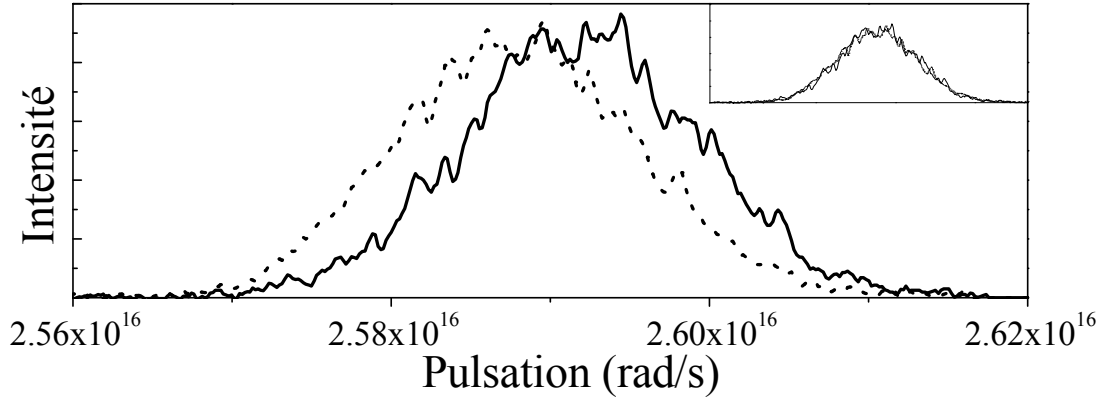
Nous avons vu qu'il était possible de générer deux impulsions UVX identiques, décalées temporellement. Pour effectuer une mesure SPIDER, il faut pouvoir décaler spectralement l'une d'elles. Plutôt que de réaliser un décalage  $\Omega$  dans le domaine UVX, nous avons choisi de décaler spectralement une des impulsions génératrices d'une quantité  $\delta\omega$ . Ce décalage sera transmis à l'harmonique  $q$  comme  $\Omega = q\delta\omega$ . Un tel décalage spectral est réalisé couramment dans les mesures SPIDER infrarouges classiques, mais il s'accompagne d'un doublement de la fréquence centrale. Ceci aurait impliqué d'étudier les harmoniques générées par un laser à 400 nm, c'est à dire les harmoniques paires du fondamental. Afin d'éviter cela, nous avons cherché à décaler le spectre d'une impulsion infrarouge en restant dans ce domaine. Le Dazzler s'est révélé être un outil idéal pour réaliser cette tâche.

Le filtre hypergaussien troué du Dazzler permet, lorsqu'il est bien ajusté, d'obtenir un spectre infrarouge quasi-rectangulaire des impulsions en sortie de chaîne. Il est possible de découper deux tranches dans un tel spectre, en appliquant successivement deux filtres de fréquences centrales différentes. Ces tranches étant plus étroites que le spectre initial, les impulsions infrarouges correspondantes sont un peu allongées (50 fs au lieu de 45 fs). La figure 2.8 présente deux spectres infrarouges obtenus en appliquant deux filtres décalés, centrés à 800 et 802 nm. Les deux spectres sont approximativement identiques et translatés. Cependant, les modulations présentes sur le haut du profil spectral ne subissent pas de décalage avec le traitement que nous appliquons, et il sera donc in-





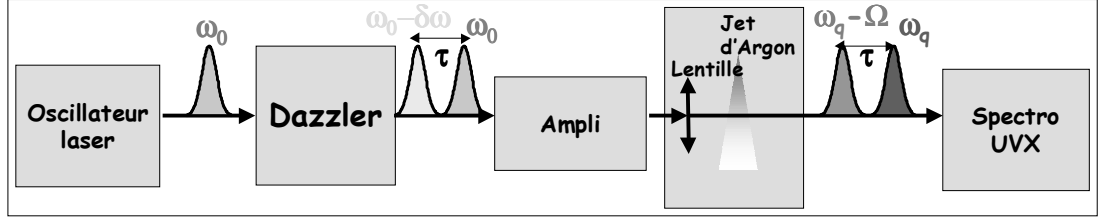
**Fig. 2.8:** Spectres infrarouges obtenus en sortie d'amplificateur, avec un filtre Dazzler centré en 800 nm (trait continu) et 802 nm (pointillés)



**Fig. 2.9:** Spectres de l'harmonique 11, générés par les deux impulsions infrarouges décalées spectralement de la figure 2.8. Chaque spectre correspond à une moyenne sur 40 tirs. L'encart présente les spectres après translation de l'un afin qu'ils se superposent.

dispensable de comparer les profils harmoniques générés par ces deux impulsions. Dans notre expérience, nous avons travaillé avec des impulsions laser limitées par transformée de Fourier. Pour étudier le transfert d'une phase spectrale non-plate de l'infrarouge sur les harmoniques, il serait envisageable de programmer une phase spectrale quadratique par exemple sur le Dazzler, et d'attribuer à l'impulsion décalée une phase identique mais également translatée de  $\delta\omega$ .

En générant des harmoniques avec l'une, puis l'autre de ces impulsions décalées, on obtient pour l'harmonique 11 les deux spectres présentés figure 2.9. Nous pouvons traduire numériquement l'un des deux spectres, afin de vérifier qu'ils se superposent bien. Le résultat est remarquable (encart sur la figure 2.9) : les deux spectres, une fois superposés, sont bien identiques. Une étude théorique récente, basée sur la résolution



**Fig. 2.10:** Dispositif expérimental pour le SPIDER harmonique.

de l'équation de Schrödinger dépendant du temps, a confirmé que la phase spectrale de l'harmonique subissait un décalage identique (Cormier et al., 2005). Cette procédure donne également une mesure du décalage spectral entre les deux impulsions. L'axe des fréquences étant à présent calibré, nous obtenons  $\Omega = 4.2 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ .

## 2.4 Mesures SPIDER Harmonique

Nous avons montré qu'il était possible grâce au Dazzler d'une part de générer deux répliques décalées temporellement d'une impulsion harmonique, et d'autre part de les décaler spectralement. Pour effectuer une mesure SPIDER sur les harmoniques, il suffit de combiner ces deux étapes en programmant le Dazzler pour qu'il délivre deux répliques infrarouges, décalées temporellement de  $\tau$ , et spectralement de  $\delta\omega$  (figure 2.10). Les décalages spectraux et temporels sont alors transférés sur les impulsions harmoniques. Pour qu'une mesure SPIDER soit valable, le délai  $\tau$  et le décalage spectral  $\Omega = q\delta\omega$  entre les deux répliques harmoniques doivent satisfaire certaines conditions.

### 2.4.1 Choix des paramètres SPIDER

#### 2.4.1.1 Délai entre les répliques

Le spectre mesuré étant une figure d'interférences fréquentielles, il faut tout d'abord pouvoir observer correctement les franges (Anderson et al., 2000). Pour un délai  $\tau$  entre deux impulsions identiques, l'interfrange est  $2\pi/\tau$  (en rad/s). Le décalage spectral de l'une des impulsions induit de légères modifications de cet interfrange (ces modifications contiennent l'information sur la dérivée de la phase spectrale), mais on peut considérer pour un calcul d'ordres de grandeur qu'il reste approximativement  $2\pi/\tau$ . Les franges seront observables seulement si cet interfrange est plus faible que la largeur spectrale de l'impulsion. Plus précisément, on peut se fixer comme critère la présence d'au moins 2 franges dans la largeur à mi-hauteur du spectre  $\Delta\omega$ . Ceci impose une borne inférieure au délai :  $\tau_{min} = 4\pi/\Delta\omega$ .

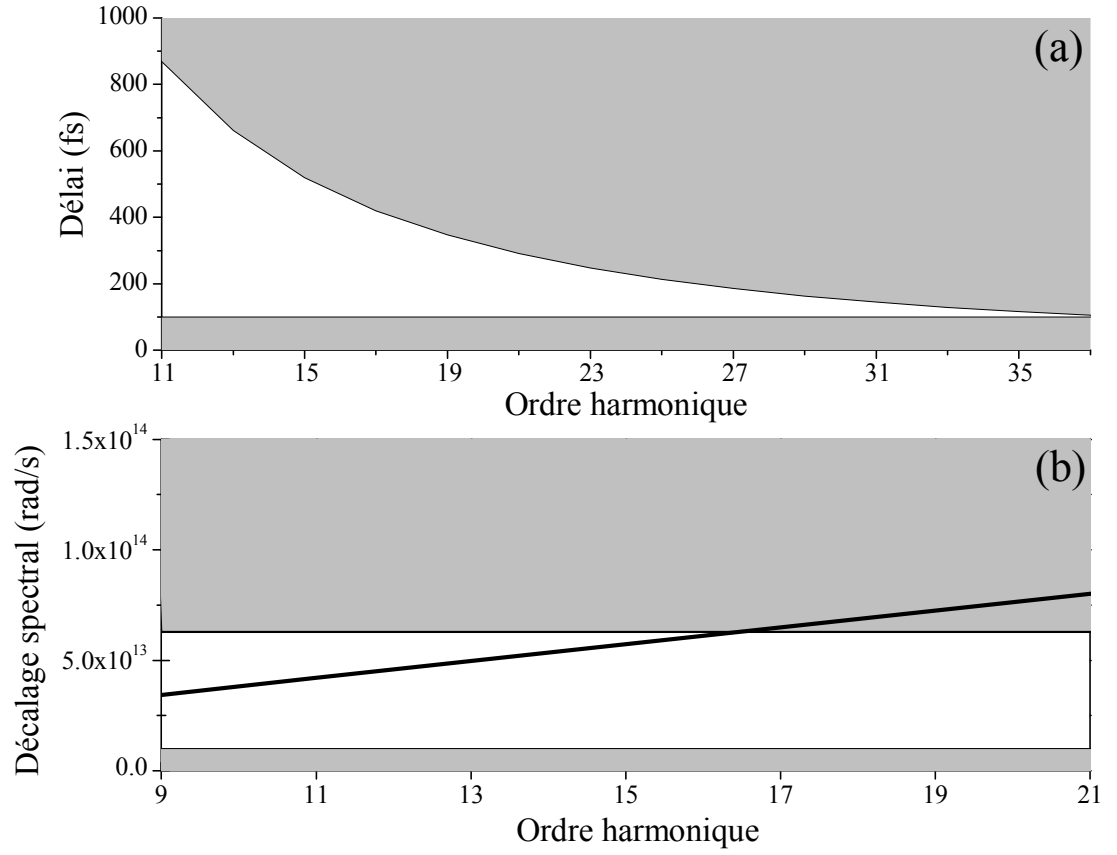
D'autre part, si l'écart entre les franges est trop faible, le spectromètre ne pourra pas les résoudre. Ainsi, il existe également une borne supérieure au délai acceptable pour la mesure, qui est fixée par la résolution du spectromètre utilisé. On voit clairement l'avantage d'effectuer une mesure optique plutôt que par spectrométrie de photoélectrons. Avec une résolution du spectromètre  $R$ , résoudre au moins deux points par frange (critère de Nyquist) impose  $\tau_{max} = \pi/R$ .

Afin d'évaluer la faisabilité d'une mesure de type SPIDER avec des harmoniques, il est nécessaire de calculer les ordres de grandeur de  $\tau_{min}$  et  $\tau_{max}$  pour un spectre harmonique typique. Nous considérons pour cela le cas de l'harmonique 11, que l'on mesure avec un spectromètre optique de résolution 0.01 nm à 73 nm. La largeur typique d'une telle harmonique est  $\Delta\omega = 2 \times 10^{14}$  rad.s<sup>-1</sup>. La résolution du spectromètre est  $R = 3.6 \times 10^{12}$  rad.s<sup>-1</sup>. Ces valeurs imposent  $60 \text{ fs} < \tau < 900 \text{ fs}$ .

Ces contraintes sont de plus en plus restrictives lorsque l'ordre harmonique augmente car la résolution du spectromètre se dégrade, ce qui impose d'augmenter l'interfrange en diminuant la valeur du délai entre les impulsions. Les valeurs de  $\tau_{max}$  correspondant à la résolution de notre spectromètre sont représentées en fonction de l'ordre harmonique sur la figure 2.11(a). Concernant  $\tau_{min}$ , en supposant que la largeur spectrale des harmoniques reste égale à celle de l'harmonique 11 nous obtenons une valeur constante égale à 60 fs. Une autre limitation sur le retard entre les impulsions est la durée de l'impulsion laser fondamentale. En effet, les impulsions infrarouges ne doivent pas se recouvrir temporellement lors de la génération d'harmoniques. On peut estimer que le retard doit être supérieur à 100 fs pour des impulsions de 50 fs. La figure 2.11(a) présente les zones acceptables pour la mesure, qui prennent en compte ces deux contraintes. Il apparaît que lorsque l'ordre harmonique est supérieur à 35, les deux conditions sont incompatibles et la mesure n'est pas possible. L'utilisation d'impulsions laser plus brèves permettrait d'étendre la zone de mesure jusqu'à des ordres plus élevés : la valeur minimale du délai serait alors plus faible à la fois en raison de la plus grande largeur des spectres harmoniques obtenus, et en raison de la moindre contrainte de non recouvrement des impulsions infrarouges.

#### 2.4.1.2 Décalage spectral

Le décalage spectral  $\Omega$  utilisé dans la mesure SPIDER correspond au pas d'échantillonnage de la phase spectrale. Pour pouvoir reconstruire exactement le champ électrique temporel à partir du spectre et de cette phase, l'échantillonnage doit être suffisamment fin (Anderson et al., 2000). La fonction obtenue par transformée de Fourier du spectre échantillonné est une convolution d'un peigne de Dirac de période  $2\pi/\Omega$ , et du profil temporel :  $F(E(\omega).\Pi_\Omega) = E(t) \otimes \Pi_{2\pi/\Omega}$ . Ainsi, le profil temporel reconstitué est une suite de répliques de  $E(t)$ , séparées de  $2\pi/\Omega$ . Par conséquent, si l'on veut pouvoir isoler



**Fig. 2.11:** Contraintes sur le délai  $\tau$  (a) et le décalage spectral  $\Omega$  (b) entre les répliques en fonction de l'ordre harmonique. Les zones blanches sont les zones acceptables pour la mesure. Le trait épais noir sur la figure (b) indique l'allure de  $\Omega$  en fonction de l'ordre avec les paramètres expérimentaux.

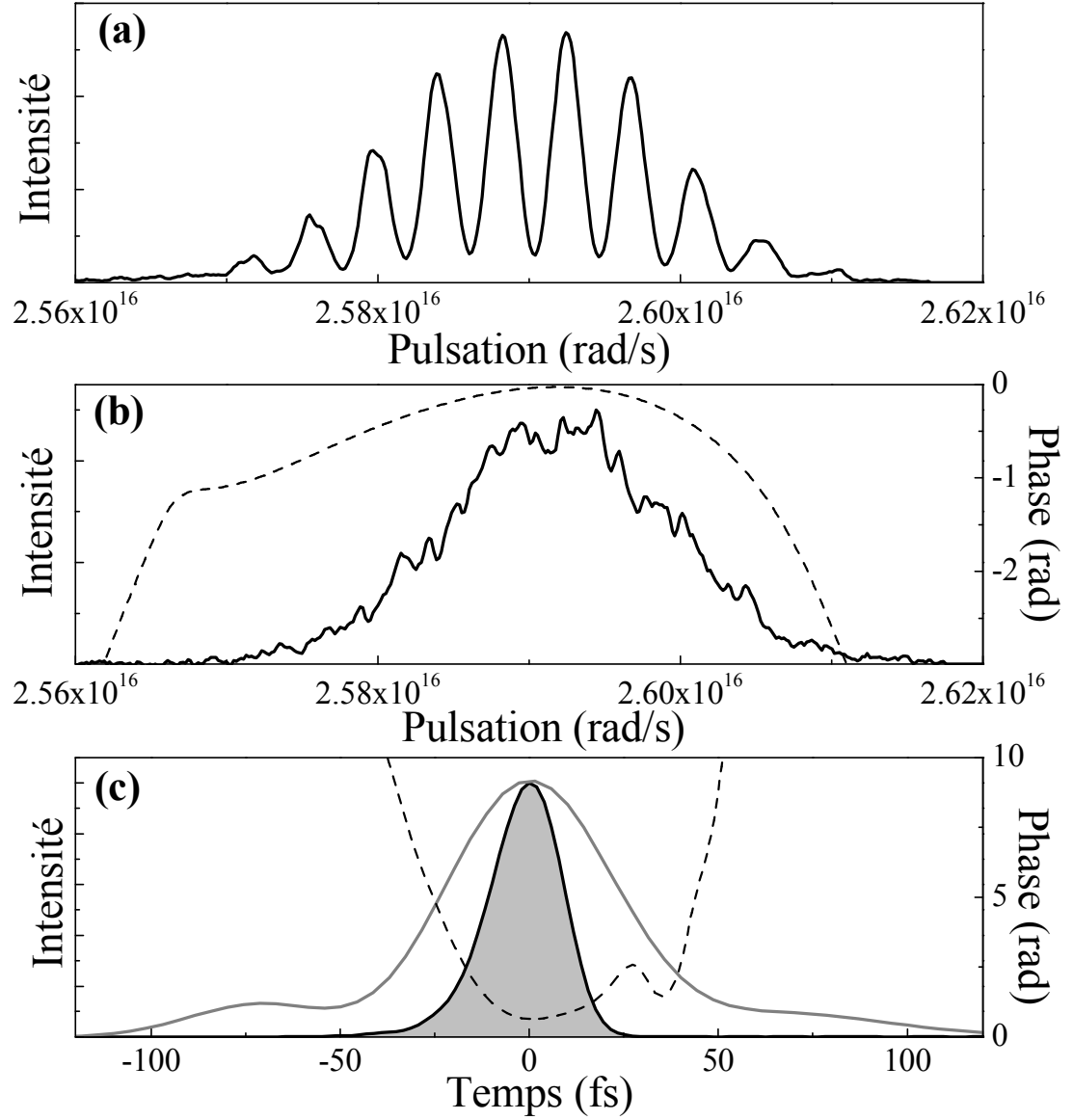
l'une de ces répliques, elles ne doivent pas se recouvrir. Ceci impose que l'écart entre deux répliques soit supérieur à la durée totale  $T$  sur laquelle s'étend l'impulsion, c'est à dire  $T < 2\pi/\Omega$ . En fait, le théorème de Whittaker-Shannon permet d'affirmer que si cette condition est vérifiée, alors on peut reconstruire exactement le profil temporel de l'impulsion à partir de son spectre échantillonné. Dans le cas de la génération d'harmoniques par un laser de durée 50 fs, on s'attend à ce que le profil temporel de l'impulsion UVX soit complètement contenu dans un intervalle  $T = 100$  fs. La condition qui en résulte sur le décalage spectral est donc  $\Omega < 2\pi/T = 6.3 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ , et est tracée sur la figure 2.11(b).

D'autre part, si le décalage spectral est trop faible, la quantité mesurée  $\varphi(\omega + \Omega) - \varphi(\omega)$  va tendre vers 0, et devient donc très sensible au bruit. Des simulations montrent que le rapport  $\Omega/\Delta\omega$  doit être supérieur à 5% pour obtenir une reconstruction robuste au bruit (Anderson et al., 2000). Ceci impose  $\Omega > 1 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ .

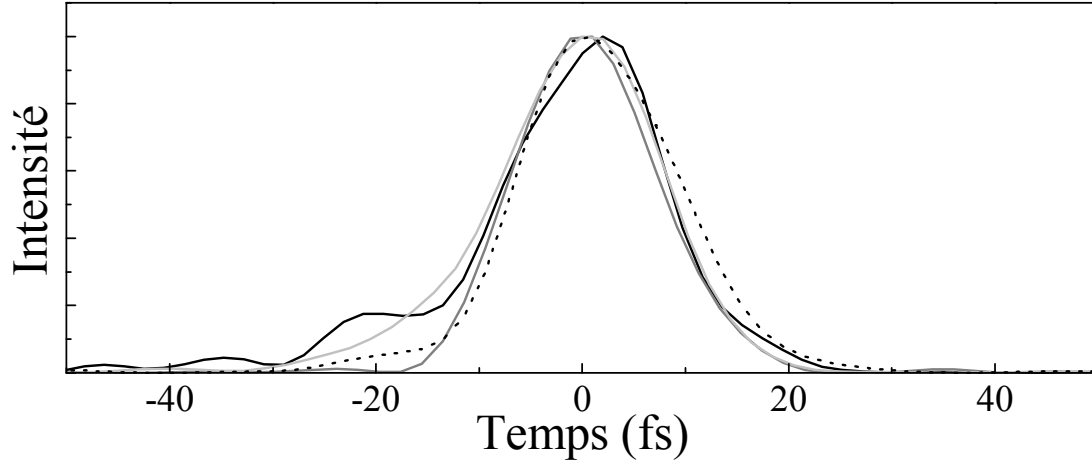
La valeur mesurée sur les spectres de l'harmonique 11 est  $\Omega = 4.2 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ , et est compatible avec ces deux conditions. Notons que pour une programmation donnée du Dazzler,  $\Omega$  augmente linéairement avec l'ordre harmonique. Nous représentons sur la figure 2.11(b) la variation de  $\Omega$  en fonction de l'ordre harmonique dans nos conditions expérimentales. Cette droite est déterminée par le décalage spectral programmé sur le Dazzler, qui était dans notre cas assez important. Elle quitte rapidement la zone acceptable (en blanc sur la figure), ce qui signifie que les mesures des harmoniques supérieures à 17 ne seront pas satisfaisantes. C'est donc ce critère qui nous limite dans notre expérience, et pour mesurer des harmoniques plus élevées il suffirait de réduire le décalage spectral programmé sur le Dazzler.

### 2.4.2 Mesure de l'harmonique 11

Lorsque l'on programme le Dazzler pour qu'il délivre un couple d'impulsions décalées temporellement de  $\tau = 150$  fs et spectralement de  $\Omega = 4.2 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ , on obtient le spectre présenté figure 2.12(a) (moyenne sur 40 tirs). L'algorithme SPIDER fournit la phase spectrale de l'impulsion qui est présentée sur la figure 2.12(b). Cette phase est principalement quadratique, mais la méthode de mesure nous donne accès aux termes d'ordres supérieurs. On obtient le profil temporel de l'impulsion harmonique par transformée de Fourier du spectre complexe (figure 2.12(c)). La durée à mi-hauteur de l'impulsion est 22 fs, ce qui correspond à 1.4 fois la limite de Fourier. L'impulsion laser utilisée pour la génération d'harmoniques est caractérisée par un SPIDER infrarouge classique. Son profil temporel est représenté sur la figure 2.12(c). Elle a une durée de 50 fs, et comporte des rebonds qui sont dus à la forme du spectre (le spectre n'est pas gaussien mais plutôt carré). Sa phase est plate. Le rapport des durées infrarouge et harmonique est de 2.3, ce qui correspond à une non linéarité effective de  $2.3^2 =$



**Fig. 2.12:** Mesure SPIDER de l'harmonique 11. (a) Spectre SPIDER obtenu en générant avec deux impulsions infrarouges décalées temporellement et spectralement. (b) Spectre harmonique et phase spectrale reconstituée. (c) Profil temporel de l'impulsion harmonique (zone colorée) et de l'impulsion laser (trait gris).



**Fig. 2.13:** Profils temporels de l'harmonique 11, mesurés avec  $\tau = 150$  fs (noir), 250 fs (gris foncé), 300 fs (gris clair), et 350 fs (pointillés)

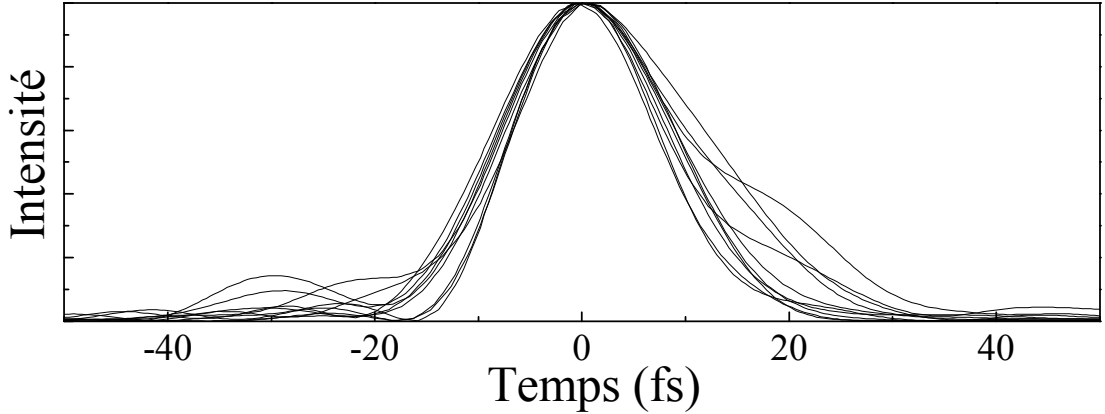
5.3. Cette valeur est en accord avec les ordres de grandeurs typiques de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, pour une harmonique du début du plateau ([Wahlstrom et al., 1993](#)).

La phase temporelle est quasi-quadratique (même si des ordres supérieurs sont mesurables), et correspond à une dérive de fréquence linéaire et négative. Cela signifie que le front montant de l'impulsion est décalé vers le bleu. Afin de quantifier cet effet, nous effectuons un ajustement quadratique de la phase temporelle, sous la forme  $\varphi(t) = \varphi_0 - 1/2bt^2$ . Le paramètre  $b$  ainsi introduit est désigné comme "*chirp rate*" en anglais. Notre mesure donne  $b = -1.0 \times 10^{28} \text{ s}^{-2}$ .

Pour tester la fiabilité de cette mesure, nous avons effectué une série d'acquisitions successives de spectres SPIDER en modifiant la valeur du délai  $\tau$  programmé dans le Dazzler. Chaque mesure correspond à une moyenne sur 100 tirs. Les profils temporels reconstitués présentent une bonne stabilité (figure 2.13). Il existe des fluctuations, qui peuvent être dues aux fluctuations du laser comme nous le verrons plus tard. La reproductibilité des résultats est une indication de la validité de la calibration du spectromètre que nous avons effectuée. En effet, une erreur dans cette calibration induit la présence de dérives de fréquence supplémentaires lorsque le délai dans la mesure varie ([Dorrer, 1999](#)).

## 2.5 Mesures monocoup

La technique SPIDER présente la propriété unique de permettre des caractérisations complètes monocoups d'impulsions lumineuses. Dans les mesures réalisées jusqu'à pré-



**Fig. 2.14:** Profils temporels monocoups de l'harmonique 11, correspondant à 10 mesures successives.

sent, nous avons reconstruit la phase spectrale harmonique à partir de spectres SPIDER moyennés. Le niveau de signal dont on dispose expérimentalement permet l'acquisition d'un spectre en un tir laser, et donc de mesures de phases spectrales monocoup. Le problème pour la détermination du profil temporel est que les divers facteurs fluctuant dans l'expérience (éclairage laser, pression dans le jet) n'affectent pas uniquement la phase, mais également le spectre harmonique. Ainsi, pour mesurer un profil temporel monocoup, il faut mesurer en même temps la phase et l'amplitude spectrale. Une version étendue de l'algorithme SPIDER permet de déterminer ces deux quantités à partir du spectre SPIDER ([Muller and Laubscher, 2001](#)). Nous avons donc modifié notre programme pour y inclure une reconstitution de l'amplitude spectrale. La figure 2.14 présente les profils temporels mesurés pour une série de 10 impulsions successives. La durée de l'harmonique varie entre 16.4 fs et 21.6 fs, avec une valeur moyenne de  $19.2 \pm 1.4$  fs. La valeur minimale de 16.4 fs est très marginale dans la distribution des durées, et on observe une bonne stabilité du profil temporel. Les fluctuations d'éclairement du laser sont évaluées à 3% rms, et étant donnée la forte non-linéarité du processus de génération ( $> 5$ ), on aurait pu s'attendre à des fluctuations du profil harmonique plus importantes.

Cette stabilité est donc remarquable, et est étudiée ici pour la première fois grâce à la technique que nous avons mise en oeuvre. En effet, les autres techniques de mesure de durée harmonique qui ont été utilisées ou proposées reposent toutes sur un moyennage : dans le cas des mesures de type FROG ou d'autocorrélation, il faut faire varier un délai entre deux impulsions, et le profil temporel obtenu est donc moyenné sur la durée du balayage ; dans le cas des mesures SPIDER reposant sur la spectrométrie de photoélectrons, il est nécessaire de travailler avec des pressions de détection suffisamment faibles pour éviter les effets de charge d'espace dans le spectromètre, ce qui impose de sommer plusieurs mesures pour constituer un spectre.



Les perspectives ouvertes par la caractérisation monocoup des impulsions harmoniques sont nombreuses. Tout d'abord, un SPIDER harmonique peut être installé en ligne sur des expériences d'application des harmoniques, et caractériser les harmoniques en temps réel. Il est ainsi possible de faire des mesures de corrélation entre des effets induits par les harmoniques et leur profil temporel. D'autre part, cette mesure peut être associée à une rétroaction sur les paramètres de génération, afin d'effectuer une mise en forme temporelle des harmoniques. L'utilisation d'algorithmes génétiques pourrait permettre d'optimiser la phase spectrale du laser, programmable dans le Dazzler, dans le but de générer des impulsions harmoniques plus brèves.

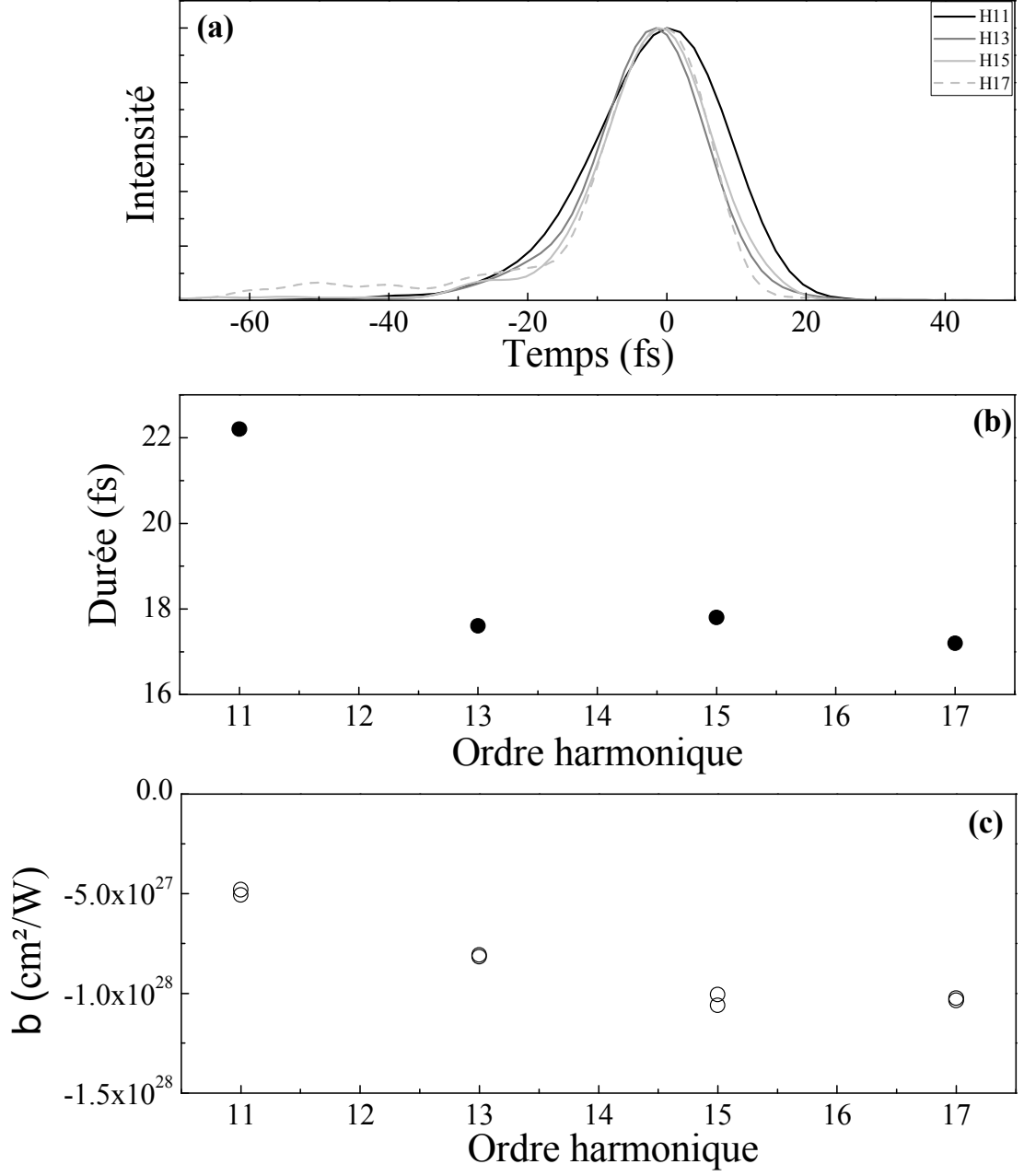
## 2.6 Applications

### 2.6.1 Caractérisation des trajectoires électroniques dans la génération d'harmoniques

La technique de mesure que nous avons mise en oeuvre permet de caractériser temporellement les harmoniques en amplitude et en phase. Une première application de ces mesures consiste à étudier le comportement de ces grandeurs, qui est lié comme nous l'avons vu au chapitre 1 à la dynamique des électrons dans le processus de génération.

Nous avons effectué des mesures SPIDER des harmoniques 11 à 17, moyennées sur 50 tirs. Dans ces conditions de génération, nous avons pu observer jusqu'à l'harmonique 21. Les mesures des harmoniques 19 et 21 n'ont pas donné des résultats satisfaisants, probablement à cause du décalage spectral qui devient trop important pour ces ordres, comme nous l'avons vu précédemment. Les profils temporels représentés sur la figure 2.15(a) indiquent une diminution de la durée de l'harmonique lorsque l'ordre augmente (figure 2.15(b)). La différence est plus notable au niveau de l'harmonique 11, et correspond peut-être à une transition du régime multiphotonique au début du plateau au régime tunnel. Dans la suite du plateau, la décroissance est moins importante. Nous avons effectué deux mesures pour chaque harmonique, avec une excellente reproductibilité.

A partir des phases temporelles reconstruites, nous mesurons les paramètres de dérive de fréquence  $b_q$  en fonction de l'ordre harmonique (figure 2.15(c)). La dérive de fréquence augmente en valeur absolue lorsque  $q$  augmente. Cette dérive de fréquence dans l'émission harmonique est, comme nous l'avons vu au chapitre 1, une conséquence de la dépendance en éclairage de la phase du dipôle atomique :  $\varphi_q = -\alpha_q I$ . Si le profil temporel d'intensité du laser est gaussien, il peut être considéré comme approximativement quadratique au voisinage de son maximum. La phase  $\varphi_q$  est alors également quadratique et correspond à une dérive de fréquence linéaire négative. Le paramètre  $b_q$  peut être relié à la valeur de  $\alpha_q$  :  $\alpha_q = -\tau_0^2 b_q / 8 \ln(2) I_0$  ( $\tau_0$  étant la durée à mi-

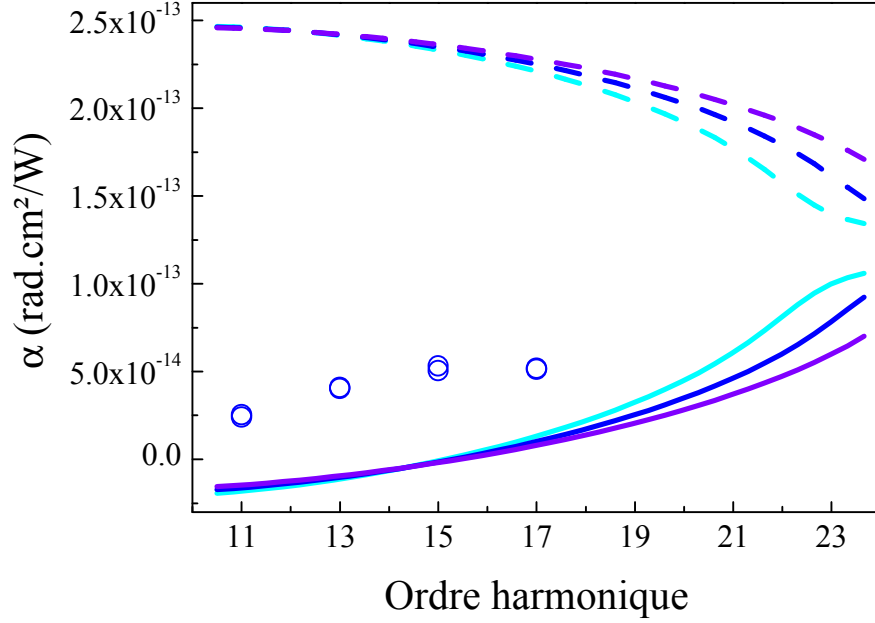


**Fig. 2.15:** (a) Profils temporels des harmoniques 11 à 17. (b) Durée à mi-hauteur des impulsions en fonction de l'ordre. (c) Evolution de la dérive de fréquence harmonique en fonction de l'ordre.

hauteur de l'impulsion laser). Nous déduisons ainsi les valeurs de  $\alpha_q$  (figure 2.16). Nous les comparons aux calculs effectués par Katalin Varjú dans le cadre du modèle de Lewenstein, et qui ont donné un bon accord à la fois avec les calculs par résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (Gaarde and Schafer, 2002a), et les mesures réalisées à Lund (Mauritsson et al., 2004). L'éclairement laser étant déterminé expérimentalement de manière assez imprécise, nous représentons les calculs pour trois valeurs encadrant la valeur estimée. L'ordre de grandeur des valeurs mesurées est compatible avec les valeurs théoriques sur les trajectoires courtes, ce qui indique que ces dernières sont la contribution principale à l'émission : elles sont macroscopiquement sélectionnées dans notre expérience par l'accord de phase (voir chapitre 4).

Le paramètre  $\alpha_q$  peut être interprété classiquement comme l'intégrale de l'énergie cinétique de l'électron sur sa trajectoire dans le continuum, et évolue dans le même sens que l'extension du mouvement (figure 1.3). L'augmentation mesurée de  $\alpha_q$  avec l'ordre harmonique est cohérente avec les calculs, et indique que les harmoniques les plus élevées proviennent des recombinaisons des électrons ayant effectué un trajet plus long dans le continuum (pour les trajectoires courtes). Cependant, nous observons un décalage entre les valeurs expérimentales et théoriques : les mesures sont systématiquement supérieures aux calculs. Les causes d'un tel désaccord peuvent être diverses. Tout d'abord, les harmoniques considérées sont générées à faible éclairement laser, et ont des ordres bas. Cette situation n'est pas celle où le modèle de Lewenstein donne les meilleurs résultats. D'autre part, des effets macroscopique interviennent probablement : le rayonnement détecté est une moyenne sur les éclairements en divers points du faisceau de génération, et les contributions d'éclairements plus faibles peuvent expliquer l'écart observé. Enfin, il est possible que la sélection des trajectoires courtes soit imparfaite et qu'une partie de l'émission mesurée provienne de trajectoires longues dont la dérive de fréquence est beaucoup plus importante.

La dérive de fréquence harmonique négative induit une variation temporelle de la fréquence instantanée du rayonnement : le front montant de l'impulsion harmonique est décalé vers le bleu et le front descendant vers le rouge. Lors de la superposition de plusieurs harmoniques, il y a donc une modification régulière de la fréquence centrale des impulsions attosecondes du train d'un demi-cycle optique au suivant. D'autre part, la variation de la dérive de fréquence en fonction de l'ordre harmonique a des conséquences sur l'espacement des impulsions attosecondes au sein du train (Mauritsson et al., 2004; Varju et al., 2005). L'augmentation de  $\alpha_q$  avec  $q$  que nous avons mesurée induit une augmentation de l'écart entre deux impulsions successives du train. Nous discuterons plus en détail ces effets dans le chapitre 6.

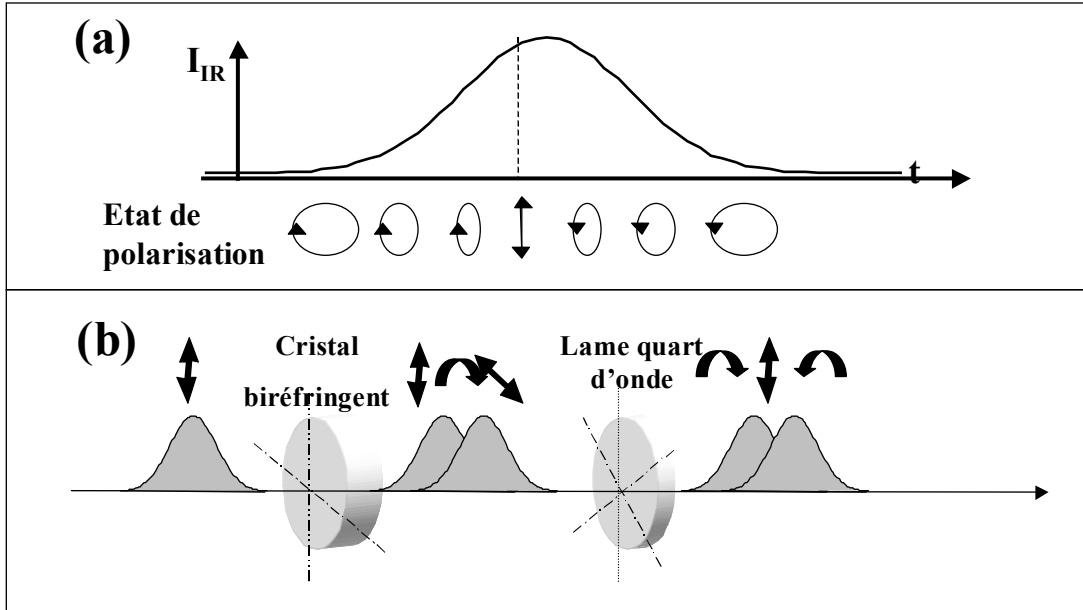


**Fig. 2.16:** Dérivée en éclaircissement de la phase harmonique en fonction de l'ordre. Les cercles sont les points de mesure, les lignes continues les calculs sur les trajectoires courtes et les tirets sur les longues, à 8, 9 et  $10 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .

### 2.6.2 Confinement temporel de l'émission harmonique

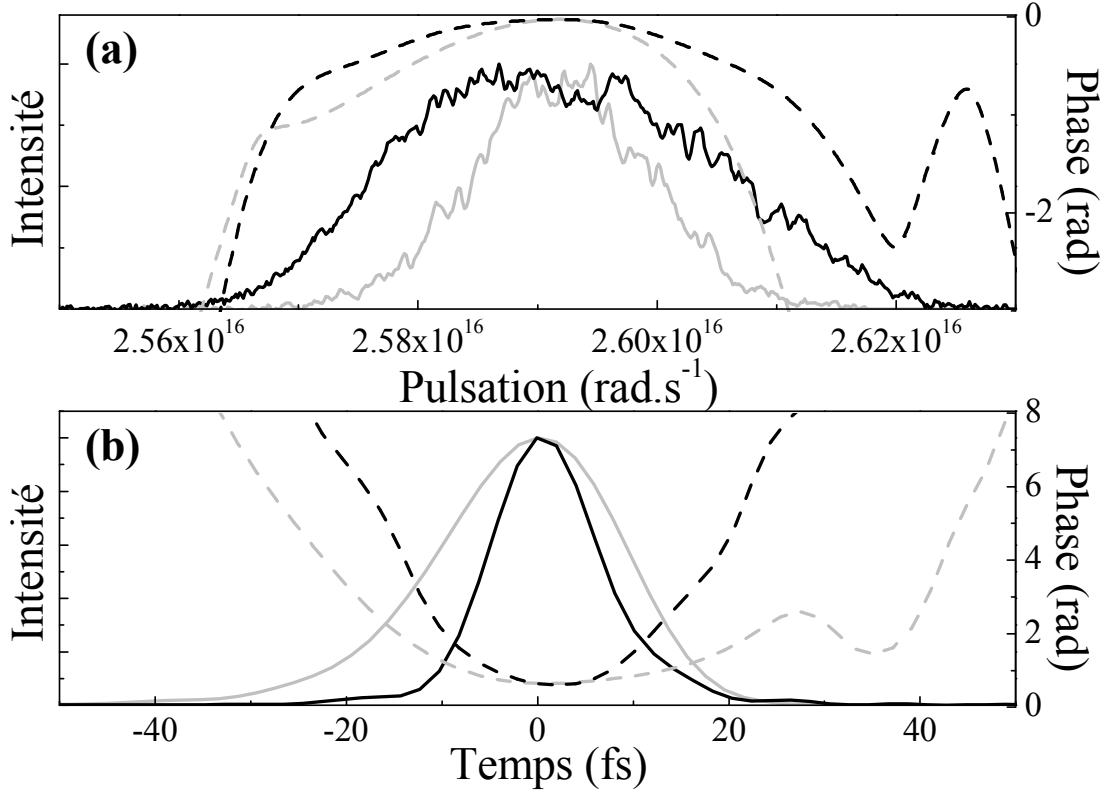
La diminution de la durée de l'émission harmonique est un problème essentiel, puisqu'elle peut permettre la génération d'impulsions attosecondes uniques. Pour parvenir à confiner temporellement l'émission, plusieurs voies sont envisageables. Tout d'abord, on peut utiliser des impulsions laser plus brèves : l'équipe de F. Krausz parvient à produire des impulsions uniques de 250 as à partir d'impulsions laser de 7 fs ([Kienberger et al., 2004](#)). Il est également possible de générer avec un laser très intense, au dessus de l'éclaircissement de saturation du gaz considéré ; dans ce cas, le milieu est complètement ionisé au bout de quelques cycles optiques, ce qui confine l'émission harmonique au front montant de l'impulsion laser (une mesure de cet effet par autocorrélation d'intensité a récemment été effectuée ([Sekikawa et al., 2004](#))). Enfin, il est possible d'utiliser une modulation de l'ellipticité du laser.

La génération d'harmoniques est très sensible à la polarisation du fondamental : dès qu'elle devient elliptique, les trajectoires semi-classiques des électrons dans le continuum ne sont plus fermées, ce qui signifie que l'électron ne revient pas sur le noyau et ne se recombine pas ; l'efficacité de génération chute ainsi brutalement avec l'ellipticité ([Budin et al., 1993](#)). Si l'on génère des harmoniques avec une impulsion laser dont l'état de polarisation varie dans le temps comme le présente la figure 2.17(a), c'est à dire est circulaire, puis linéaire, puis circulaire à nouveau, la génération ne sera efficace



**Fig. 2.17:** Principe du confinement temporel par porte de polarisation. (a) Impulsion laser à ellipticité variable permettant le confinement de l'émission harmonique autour de la zone de polarisation linéaire. (b) Dispositif expérimental de création de l'impulsion infrarouge à ellipticité variable.

qu'au voisinage de l'instant  $t = 0$  où l'ellipticité est nulle. La durée de l'émission harmonique devrait donc être réduite : on crée une porte temporelle pour la génération. Le principe de cette méthode a été initialement proposé par [Corkum et al. \(1994\)](#), et elle a donné lieu à de nombreuses études expérimentales. Les premières indications de l'efficacité du confinement temporel ont consisté en l'observation de modifications spectrales associées à la mise en place de la porte temporelle ([Altucci et al., 1998](#); [Kovacev et al., 2003](#); [Tcherbakoff et al., 2003](#)). Cependant, même en cas de bon accord des résultats expérimentaux avec les simulations, des mesures de spectres ne peuvent constituer une démonstration rigoureuse d'une réduction de durée à cause de possibles effets de phase spectrale. Une autre signature du confinement a été observée à Saclay : le signal harmonique a été mesuré en fonction de la largeur de la porte temporelle ; il présente une décroissance brutale lorsque l'on "ferme" la porte, qui peut être attribuée à une diminution de la durée de l'harmonique ([Kovacev et al., 2003](#)). La première démonstration directe de l'efficacité de la porte temporelle a été réalisée par les équipes de Lund et Bordeaux ([Lopez-Martens et al., 2004a](#)). En mesurant par spectrométrie de photoélectrons la corrélation croisée des harmoniques générées par un laser de 35 fs et d'une impulsion infrarouge de 12 fs, ces équipes ont montré un confinement temporel de l'émission harmonique d'un facteur 2, associé à une augmentation du paramètre de dérive de fréquence  $b$ .



**Fig. 2.18:** Mesures SPIDER Harmonique de l'harmonique 11 avec une porte temporelle. (a) Spectre (trait continu) et phase spectrale (tirets), avec (noir) et sans (gris) porte temporelle. (b) Intensité (trait continu) et phase temporelle (tirets), avec (noir) et sans (gris) porte temporelle.

Nous avons tenté de reproduire ces résultats et de mesurer directement les profils temporels grâce à la technique SPIDER Harmonique. Pour réaliser une impulsion laser à polarisation variable dans le temps, nous avons utilisé le dispositif proposé par Eric Constant et V. Platonenko (figure 2.17(b)) (Constant, 1997; Platonenko and Strelkov, 1999). L'impulsion laser initiale, polarisée linéairement, est propagée dans un cristal biréfringent. On obtient deux répliques, décalées temporellement de 50 fs, et polarisées perpendiculairement. Ces deux répliques passent alors dans une lame quart d'onde dont les axes sont à  $45^\circ$  des axes du premier cristal. Les deux polarisations linéaires orthogonales sont transformées en polarisations circulaires droite et gauche. Le champ électrique total résultant présente une ellipticité nulle à l'instant où les deux répliques se superposent avec la même amplitude, et cette ellipticité augmente rapidement vers 1 autour de cet instant.

Nous avons effectué une mesure SPIDER du champ harmonique produit par l'impulsion laser à polarisation variable. Cette impulsion étant elle-même constituée de deux répliques décalées, nous avons augmenté le délai entre les deux impulsions délivrées

par le Dazzler afin d'éviter un recouvrement temporel. L'étude de l'harmonique 11 est présentée figure 2.18, pour un éclairage laser de  $1.2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ , et avec un délai SPIDER  $\tau = 250 \text{ fs}$ . Les profils spectraux et temporels obtenus dans cette configuration sont comparés à ceux obtenus sans porte temporelle sur la figure 2.12. Un élargissement spectral d'un facteur 2 est mesuré, et la durée de l'impulsion harmonique est réduite de 22 fs à 13 fs. Le confinement temporel s'accompagne également d'une augmentation du paramètre de dérive de fréquence  $b$  d'un facteur 2. Ces résultats constituent les premières mesures de profils temporels en présence d'une porte de polarisation. Ils confirment les observations des précédentes expériences (Lopez-Martens et al., 2004a), et démontrent à la fois l'utilité de la technique pour réduire la durée d'impulsion et celle de la méthode de mesure en termes d'optimisation des profils temporels des harmoniques.

## 2.7 Perspectives : caractérisation d'impulsions attosecondes

La technique que nous avons développée a été utilisée avec succès pour mesurer le profil temporel d'harmoniques d'ordre élevé. La caractérisation complète a permis de mesurer l'évolution de la phase du dipôle harmonique en fonction de l'ordre, et d'étudier le confinement temporel de l'émission par une porte de polarisation. Nous avons démontré la possibilité d'effectuer des mesures monocoups, ce que seule cette méthode permet à notre connaissance.

Nous nous sommes intéressés à la caractérisation d'harmoniques individuelles. Une caractérisation complète du champ résultant d'une superposition de plusieurs harmoniques n'était pas possible expérimentalement par cette méthode, puisque le spectre harmonique comporte des points d'amplitude spectrale nulle qui interdisent la reconstruction de la phase. Néanmoins, en utilisant des impulsions lasers plus courtes, il est envisageable d'étendre nos mesures au domaine attoseconde.

Les études de la génération d'harmoniques par des impulsions de durée inférieure à  $40 \text{ fs}$  montrent qu'il est possible d'obtenir des spectres sans discontinuité sur plusieurs ordres harmoniques (Sansone et al., 2004). Les spectres sont constitués des pics harmoniques, entourés de composantes spectrales plus faibles mais non nulles. En utilisant un Dazzler pour produire des couples d'impulsions harmoniques décalées temporellement et spectralement, on obtiendrait alors deux trains attosecondes décalés temporellement et spectralement. Notons que dans ce cas, le décalage spectral ne serait pas constant sur tout le spectre mais *linéaire en fréquence*, puisque chaque harmonique est décalée d'une quantité proportionnelle à son ordre. Une étude théorique récente a montré la possibilité d'effectuer des mesures SPIDER de trains attosecondes dans un tel cas (Cormier et al., 2005).

La mise en place d'une telle caractérisation attoseconde présenterait de nombreux avantages, mais est soumise à certaines contraintes sur la source (laser très bref) qui restreignent sa généralité. Afin de pallier à ces problèmes nous avons développé une méthode de caractérisation complète d'impulsions attosecondes arbitraires, FROG CRAB, qui sera détaillée au chapitre [5](#).





## Chapitre 3

# Principe de mesure des phases relatives des harmoniques : RABBITT

Les phases relatives des harmoniques conditionnent la structure attoseconde du rayonnement. Dans ce chapitre, nous considérons les harmoniques comme discrètes : chaque harmonique se voit attribuer une amplitude  $A_q$  et une phase  $\varphi_q$ . Le profil temporel du rayonnement est obtenu par transformée de Fourier :

$$I(t) = \left| \sum_{q=1}^N A_q \exp(-i\omega_q t + i\varphi_q) \right|^2 \quad (3.1)$$

En conséquence de cette discrétisation spectrale, la structure temporelle est périodique de période  $T_0/2$ . Le train d'impulsions attosecondes obtenu correspond donc à un profil moyen sur la durée totale de l'émission harmonique.

Les amplitudes  $A_q$  sont aisément mesurables sur un spectre de puissance du rayonnement. En revanche, les mesures de phase spectrale dans le domaine UVX sont délicates, comme nous l'avons exposé au chapitre 2, et nécessitent d'employer des techniques spécifiques. Ce problème est d'autant plus difficile à résoudre concernant les phases relatives des harmoniques que la mesure doit être effectuée sur une gamme spectrale très large, pouvant s'étendre jusqu'à plusieurs dizaines d'eV. Les phases  $\varphi_q$  sont par conséquent longtemps restées inconnues.

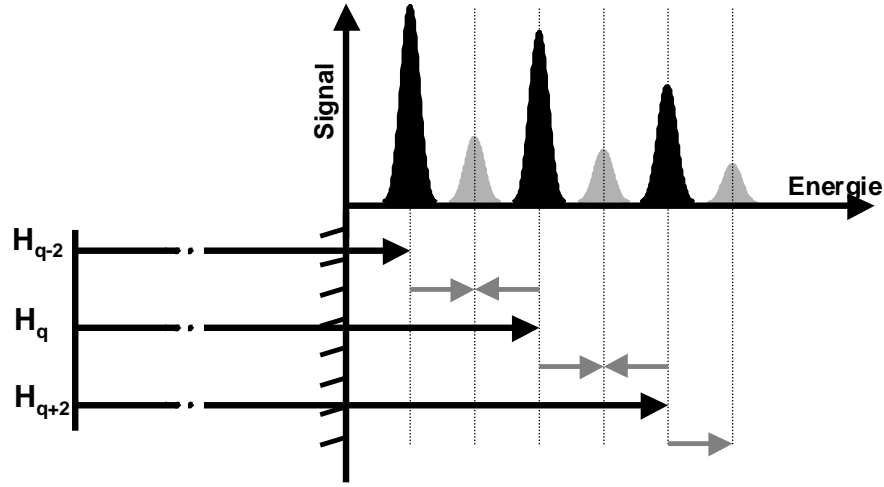
La première mesure de phases spectrales a été réalisée par [Paul et al. \(2001\)](#). La technique utilisée porte le nom de RABBITT (*Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions*, reconstruction de battement attoseconde par interférence de transitions à deux photons) ([Muller, 2002](#)), et est basée sur la photoionisation à deux photons, deux couleurs ([Veniard et al., 1996](#)). Elle a permis de caractériser

en amplitude et en phase un groupe de 5 harmoniques consécutives générées dans l'argon, et ainsi de mesurer des impulsions de 250 as, ce qui est très proche de la limite de Fourier. Une extension de cette technique est survenue lorsque [Dinu et al. \(2003\)](#) ont montré qu'elle permettait dans certaines conditions d'accéder à la synchronisation des impulsions attosecondes par rapport au laser générateur, autorisant des comparaisons directes avec les simulations de la réponse de l'atome unique. En effectuant la mesure des phases de 5 harmoniques consécutives générées dans des gaz différents, [Aseyev et al. \(2003\)](#) ont montré une influence des conditions de génération sur cette synchronisation.

Toutes ces études expérimentales étaient limitées à la caractérisation d'un groupe de 5 harmoniques, en raison de la sélectivité spectrale de certaines optiques dans le dispositif expérimental ou de la faiblesse du niveau de signal. Les profils temporels mesurés ont toujours été proches de la limite de Fourier. Si cette propriété restait vraie sur une plus large gamme spectrale, alors la génération d'impulsions de quelques attosecondes serait possible en superposant plusieurs centaines d'harmoniques. Une étude large bande des phases relatives des harmoniques était par conséquent nécessaire. Nous présentons dans ce chapitre le principe de la méthode RABBITT, ainsi que le dispositif large bande que nous avons utilisé pour réaliser des mesures de phases harmoniques de plusieurs dizaines d'harmoniques. Les expériences ont eu lieu à Saclay en collaboration avec Leszek Frasinski et Marek Stankiewicz de l'université de Reading (Grande Bretagne), et Catalin Dinu et Harm Muller du FOM à Amsterdam (Pays Bas). Nous avons également bénéficié du support théorique de Richard Taïeb du LCPMR à Paris.

### 3.1 Ionisation à deux photons, deux couleurs

Lorsqu'un atome interagit avec un champ UVX, il peut être ionisé et libérer des électrons dont l'énergie cinétique est la différence entre l'énergie du photon ionisant et le potentiel d'ionisation. Ainsi, en focalisant des harmoniques d'ordre élevé dans un jet de gaz, on produit des photoélectrons dont le spectre reflète celui des harmoniques situées au dessus du potentiel d'ionisation du gaz cible. Si l'on ajoute au rayonnement harmonique un faible champ infrarouge ("d'habillage"), de nouvelles transitions de photoionisation sont possibles. Ce sont des transitions à deux photons et deux couleurs : absorption simultanée d'un photon harmonique et d'un photon infrarouge, et absorption d'un photon harmonique et émission simultanée d'un photon infrarouge. Il apparaît de nouvelles composantes dans le spectre de photoélectrons sous la forme de pics satellites (*sidebands*) situés entre les harmoniques (figure 3.1). Nous considérons la situation où le champ infrarouge d'habillage a la même fréquence que celui qui génère les harmoniques. Les satellites sont alors équidistants des harmoniques adjacentes. Si l'éclairement du laser est trop élevé, plusieurs photons infrarouges peuvent être absorbés ou émis, ce qui crée des satellites d'ordre élevé. Si on l'augmente encore, le champ



**Fig. 3.1:** Principe de l'ionisation à deux photons, deux couleurs par un champ harmonique en présence d'un champ infrarouge. Les photons harmoniques sont représentés en noir et les photons infrarouges par les flèches grises. Le spectre de photoélectrons est représenté en haut et est constitué de pics harmoniques (en noir) et de satellites (en gris).

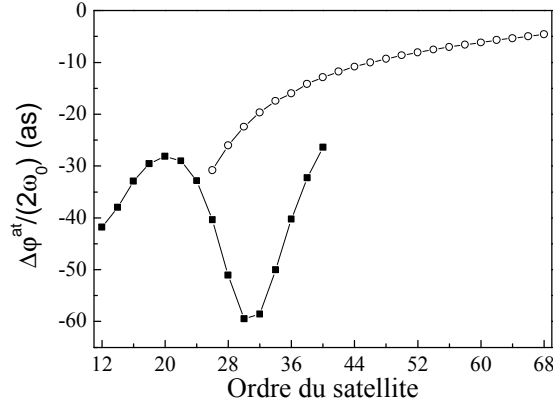
infrarouge peut à lui seul ioniser le gaz. Nous nous plaçons dans un cas où aucun de ces deux phénomènes n'a lieu, c'est-à-dire avec des éclaircements d'habillage de l'ordre de quelques  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>.

Le pic satellite d'énergie  $(q + 1)\omega_0$  reçoit une contribution des deux harmoniques adjacentes  $q$  et  $q + 2$ . Deux chemins quantiques différents mènent à la même énergie finale, et il se produit un phénomène d'interférence. Valérie Vénier *et al.* ont montré que l'amplitude du satellite  $(q + 1)$  comportait un terme oscillant

$$S_{q+1} = S_{q+1}^0 \cos(2\varphi_{IR} + \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at}) \quad (3.2)$$

où  $\varphi_{IR}$  est la phase du champ infrarouge d'habillage et  $\Delta\varphi^{at}$  un terme de phase atomique caractéristique de l'atome considéré (Vénier *et al.*, 1996). La phase de ce terme contient donc l'information sur la différence de phase entre deux harmoniques consécutives. En introduisant un délai  $\tau$  entre les faisceaux infrarouge et harmonique, il est possible d'imposer une phase du laser  $\varphi_{IR} = \omega_0\tau + \varphi_0$ , où  $\varphi_0$  est une phase de référence. Lorsque le délai varie, l'amplitude des satellites est modulée et oscille à la fréquence double du laser, avec une phase  $\varphi_{sat} = \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at} + 2\varphi_0$ .

Afin d'extraire la différence de phase entre les harmoniques  $q$  et  $q + 2$  de l'oscillation du satellite, il est nécessaire de connaître le terme de phases atomiques  $\Delta\varphi^{at}$ . Richard Taïeb du Laboratoire de Chimie Physique Matière et Rayonnement à Paris, et indépendamment Catalin Dinu et Harm Muller du FOM à Amsterdam ont calculé ces phases en fonction de l'ordre harmonique, pour différents gaz de détection (Mairesse *et al.*, 2003). Nous représentons sur la figure 3.2 le terme correctif à la phase du satellite, exprimé



**Fig. 3.2:** Corrections de phase atomique dans l'argon (carrés) et l'hélium (cercles).

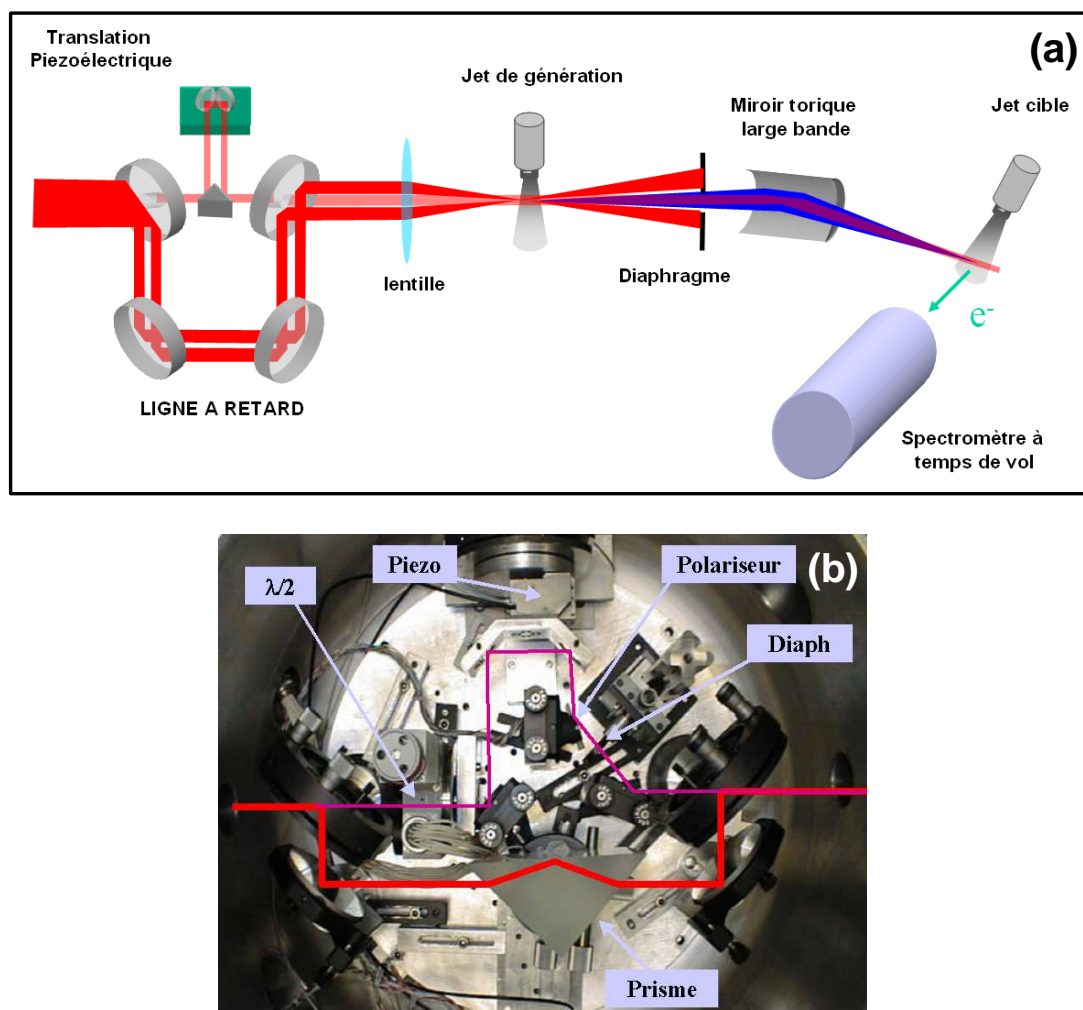
en attosecondes. Les corrections sont de l'ordre de quelques dizaines d'attosecondes, et tendent vers 0 pour l'hélium lorsque l'ordre harmonique augmente.

## 3.2 Mise en oeuvre expérimentale

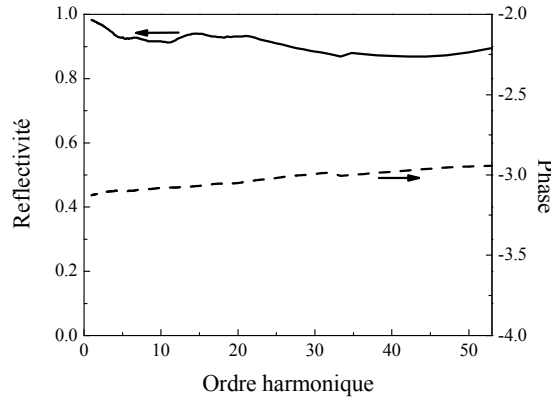
### 3.2.1 Dispositif simple

La réalisation expérimentale d'une mesure de phases relatives des harmoniques nécessite de disposer d'un faisceau harmonique et d'un faisceau infrarouge, avec un délai variable. Le dispositif que nous avons mis en place en 2003 est présenté sur la figure 3.3. Nous utilisons le laser LUCA du SPAM, qui fournit des impulsions de 50 fs à 800 nm, avec un taux de répétition de 20 Hz et une énergie pouvant aller jusqu'à 80 mJ. Dans nos expériences, nous n'avons utilisé qu'une fraction de cette énergie (moins de 15 mJ). Le faisceau laser incident est séparé spatialement en deux parties par un miroir troué. Le trou dans le miroir a un diamètre de 8 mm, et le faisceau incident a un diamètre maximum d'environ 30 mm. La répartition spatiale d'énergie du faisceau présentant un profil rectangulaire, la plupart de l'énergie est contenue dans le faisceau annulaire réfléchi par le miroir.

Ce faisceau passe par le bras fixe de la ligne à retard. Il est alors focalisé par une lentille de 1 m de focale dans un jet pulsé, où il génère des harmoniques d'ordre élevé. Le faisceau annulaire est ensuite bloqué par un diaphragme de diamètre 4 mm placé à 10 cm après le miroir torique (il est avant sur le schéma par souci de simplicité). Les harmoniques sont principalement émises dans l'axe, et la plupart du faisceau UVX passe donc à travers le diaphragme. Il est refocalisé par un miroir torique en platine de 70 cm de focale. Le miroir travaille sous  $3^\circ$  d'incidence rasante, ce qui permet d'avoir une



**Fig. 3.3:** (a) Dispositif expérimental de mesure des phases relatives. (b) Photographie de la ligne à retard.



**Fig. 3.4:** Réflectivité et déphasage à la réflexion calculés du miroir en platine, sous  $3^\circ$  d'incidence rasante.

bonne réflectivité sur une large gamme spectrale. De plus, le déphasage à la réflexion induit sur les harmoniques est négligeable (figure 3.4). Les harmoniques sont focalisées dans un jet cible placé dans le volume source d'un spectromètre d'électrons à bouteille magnétique (Kruit and Read, 1983).

La partie centrale du faisceau laser initial passe par le second bras de la ligne à retard, qui comporte un couple de miroirs montés sur une translation piézo-électrique. Son énergie peut être ajustée grâce à un polariseur associé à une lame demi-onde motorisée, et son diamètre est également réglable. Ce faisceau passe dans le jet de gaz sans produire d'harmoniques, car son éclairement y est trop faible. Il traverse ensuite le diaphragme et est focalisé par le miroir torique dans le jet cible où il peut induire des transitions à 2 photons 2 couleurs laissant apparaître des satellites sur le spectre de photoélectrons.

Nous disposons ainsi de deux faisceaux, harmonique et infrarouge, avec un retard variable. On peut modifier la polarisation, l'énergie, le diamètre, et même la phase spectrale du faisceau d'habillage. En effet, il est possible d'introduire un élément dispersif sur la voie de génération (comme un prisme, sur la photo de la figure 3.3), et de pré-compenser à l'aide des réseaux du compresseur la dérive de fréquence positive qu'elle introduit. On garde ainsi une impulsion de génération limitée par transformée de Fourier, tandis que l'impulsion d'habillage a une dérive de fréquence négative.

Les photoélectrons produits dans la zone d'interaction du spectromètre sont collectés grâce à une bouteille magnétique. La configuration de champs magnétiques permet la détection de tous les électrons émis dans un angle solide de  $2\pi$  (Kruit and Read, 1983). Les électrons émis avec la même énergie cinétique arrivent en même temps au bout du tube de temps de vol, quelle que soit la direction de leur vitesse initiale. Ils sont alors détectés par des galettes de micro-canaux qui permettent d'enregistrer le signal d'électrons en fonction du temps de vol, avec une résolution de l'ordre de 10 ns. La

correspondance entre temps de vol et énergie cinétique permet de déduire simplement le spectre de photoélectrons. Nous avons utilisé différents gaz de détection : l'argon a un faible potentiel d'ionisation ( $I_p^{Ar} = 15.8 \text{ eV} = 10.2\hbar\omega_0$ ) et une section efficace élevée pour les harmoniques basses, mais qui chute brusquement et interdit la détection d'harmoniques supérieures à H25 ; le néon permet de détecter les harmoniques à partir de H15 ( $I_p^{Ne} = 21.6 \text{ eV} = 13.9\hbar\omega_0$ ) et a une section efficace assez plate jusqu'à des ordres élevés ; l'hélium permet de détecter à partir de l'harmonique 17 ( $I_p^{He} = 24.6 \text{ eV} = 15.9\hbar\omega_0$ ) et sa section efficace décroît lentement, permettant également les mesures d'harmoniques élevées. La pression du gaz utilisé dans la chambre de détection du spectromètre est ajustée par une microfuite continue, et est de l'ordre de quelques  $10^{-5}$  mbar. Elle est choisie pour permettre d'obtenir un spectre en accumulant seulement quelques dizaines de tirs laser, sans toutefois observer d'effet de charge d'espace. Le niveau de signal obtenu dans cette série d'expériences est très supérieur à celui des premières mesures effectuées au kilohertz par Pierre-Marie Paul *et al.*. En effet, les spectres étaient alors accumulés sur 60000 tirs, et de fortes instabilités du signal empêchaient de résoudre les oscillations des satellites sans normalisation du signal total (Paul, 2001).

Lors de la mise en place du dispositif expérimental, le point délicat est l'alignement des éléments optiques, notamment du miroir torique. Un système d'imagerie de la zone d'interaction du spectromètre permet de s'assurer que les faisceaux sont bien centrés entre les pôles. Un dispositif de mesure du profil spatial du faisceau infrarouge au foyer du torique ou en champ lointain permet de minimiser les aberrations lors de l'alignement du miroir. L'ajustement fin de la position verticale du faisceau dans la zone d'interaction du spectromètre est réalisé en modifiant la hauteur des pieds de l'ensemble du spectromètre. Le diaphragme situé juste après le torique est amovible, et l'on peut donc vérifier la superposition spatiale et temporelle des deux faisceaux infrarouges en champ lointain. On peut également s'assurer que, lorsque le diaphragme est en place, il élimine bien la totalité du faisceau annulaire de génération. Lorsque le jet de génération fonctionne, nous observons parfois un peu du faisceau de génération qui est diffusé sur l'axe par le gaz et parvient jusqu'au spectromètre. Nous en discuterons les conséquences lors de l'analyse des données .

La mesure des phases relatives est basée sur l'observation d'oscillations des satellites à la fréquence double du laser lorsque le délai varie. Il est donc essentiel de disposer d'une stabilité suffisante de la ligne à retard, c'est-à-dire meilleure que le demi-cycle optique. Nous avons bénéficié de l'expérience du travail de thèse de Milutin Kovacev, qui est parvenu à réaliser à Saclay des mesures interférométriques à la fréquence harmonique grâce au développement d'une ligne à retard extrêmement compacte et sous vide (Kovacev, 2003). Dans notre cas, la contrainte sur la stabilité est moindre et le dispositif est moins compact. Il est installé dans une enceinte à vide, que l'on peut pomper pour atteindre un vide primaire de l'ordre de  $10^{-1}$  mbar. Nous arrêtons alors le pompage afin d'éviter les perturbations dues aux vibrations des pompes. Au cours des mesures, nous avons



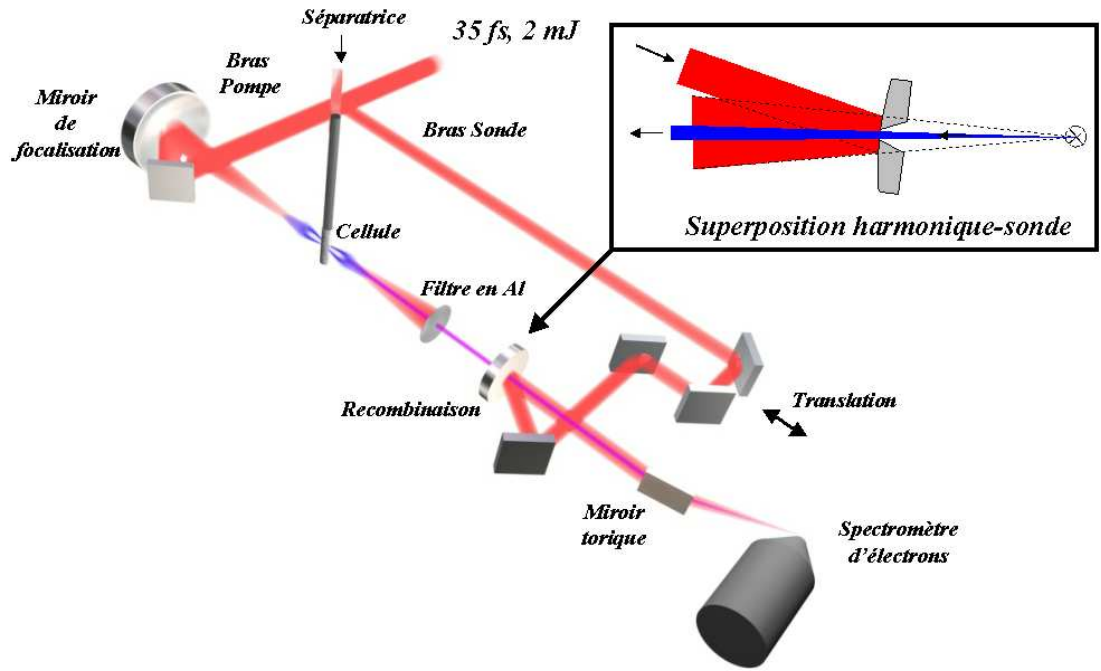
conclu que ce vide primaire n'était pas nécessaire pour observer des oscillations des satellites, mais qu'il était indispensable de fermer l'enceinte pour éviter les perturbations de la translation piézo-électrique par des ondes acoustiques. Lors des acquisitions, le délai de la ligne à retard est ajusté grossièrement par une platine de translation Microcontrole, et est commandé finement par le transducteur piézo-électrique piloté par un PC. A chaque position du piézo-électrique, un oscilloscope moyenne à 20 Hz les traces délivrées par les galettes de microcanaux, puis transmet la trace moyenne au PC.

### 3.2.2 Dispositif de Lund

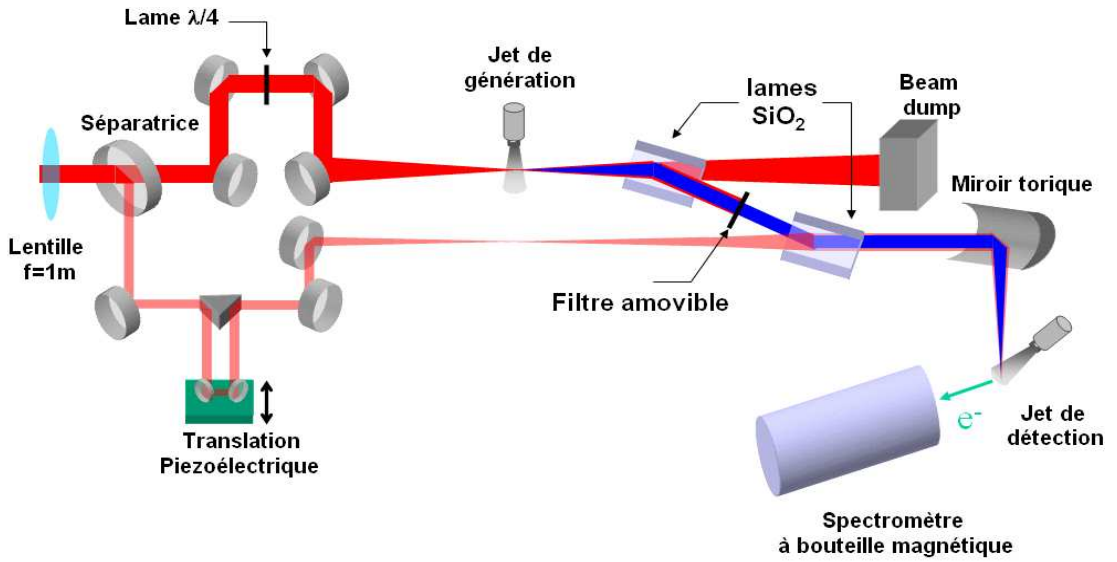
Sur le dispositif que nous avons développé et utilisé à Saclay en 2003, les faisceaux infrarouges d'habillage et de génération sont superposés spatialement dans le jet de génération. L'avantage de cette configuration est que les interférences optiques dans le jet fournissent une référence de phase pour les mesures RABBITT (voir ci-dessous). Cependant, il est impossible dans ce schéma d'effectuer une sélection spectrale d'un groupe d'harmoniques grâce à un filtre métallique, puisque celui-ci éliminerait l'infrarouge d'habillage. L'équipe de Lund a développé un système de type Mach-Zehnder évitant ce problème (figure 3.5). Une lame permet de séparer spatialement le faisceau infrarouge incident en deux parties. La plus intense est focalisée par un miroir sphérique dans une cellule de gaz, où elle génère les harmoniques d'ordre élevé. Un filtre d'aluminium élimine ensuite l'infrarouge et les harmoniques basses. Le faisceau UVX passe à travers le trou pratiqué au centre du miroir de recombinaison, et est refocalisé par le torique dans la zone d'interaction du spectromètre à bouteille magnétique. La seconde partie du faisceau infrarouge passe dans le bras sonde de la ligne à retard, sur lequel le délai peut être ajusté. Elle est recombinaisonnée avec l'UVX grâce au miroir troué. Ce miroir est légèrement concave de manière à adapter les courbures des fronts d'ondes infrarouge et UVX. Un tel dispositif requiert une grande stabilité mécanique puisque les bras de la ligne à retard ont une longueur de l'ordre du mètre.

### 3.2.3 Dispositif Saclay II

En 2004, lors de la seconde campagne expérimentale de mesure de trains d'impulsions attosecondes à Saclay, nous avons mis en place un dispositif expérimental encore plus flexible que celui de Lund. En effet, sur ce dernier le passage du faisceau harmonique dans le trou du miroir de recombinaison peut en affecter les propriétés (voir chapitre 4). Le schéma que nous avons implémenté permet en revanche d'étudier la totalité du faisceau harmonique généré. Il repose également sur une séparation spatiale des deux bras de la ligne à retard, de type Mach-Zehnder (figure 3.6). La lame séparatrice est placée après la lentille, ce qui permet d'avoir la même convergence pour les deux faisceaux. Le retard est assuré par une translation piezoélectrique. Les deux faisceaux



**Fig. 3.5:** Dispositif expérimental de mesures RABBIT de Lund, avec filtrage des harmoniques.



**Fig. 3.6:** Dispositif expérimental de mesures RABBIT de Saclay avec filtrage des harmoniques.

se propagent parallèlement sous vide, l'un passant dans le jet de gaz où il génère les harmoniques.

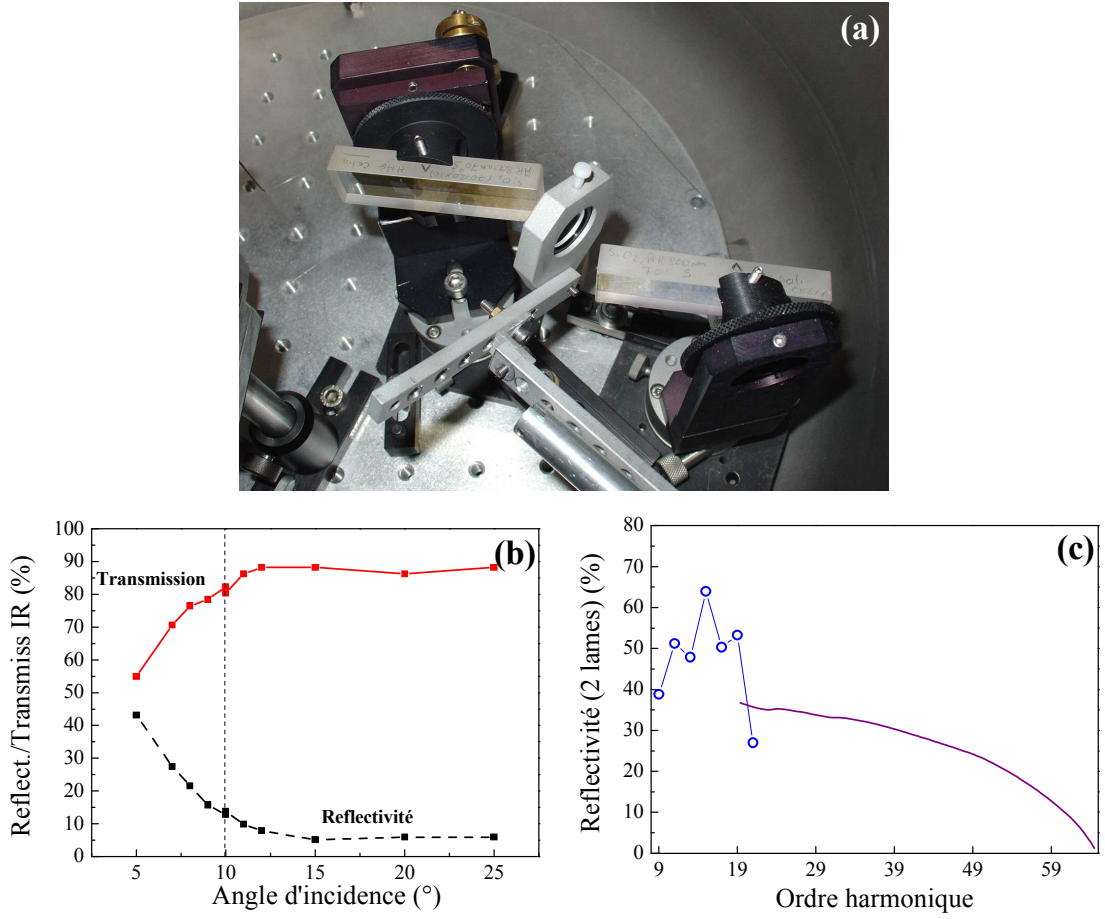
Le dispositif de recombinaison des faisceaux UVX et infrarouge est basé sur l'utilisation de lames de silice, traitées antireflet pour l'infrarouge grâce à un dépôt de multicouches. La dernière couche du dépôt est en silice, et réfléchit donc efficacement les harmoniques. Les caractéristiques de ces lames, conçues et gracieusement prêtées par l'équipe du CELIA à Bordeaux, sont présentées sur la figure 3.7. Nous avons mesuré la réflectivité infrarouge grâce à un mesureur de puissance, et la réflectivité UVX grâce à un photomultiplicateur associé à un monochromateur. La réflectivité d'un ensemble de deux lames est supérieure à 50 % pour les harmoniques 9 à 21. Le comportement aux énergies plus élevées, provenant des données du CXRO, est également présenté sur la figure 3.7(c), et montre que ces lames peuvent être utilisées pour étudier des harmoniques élevées. Du point de vue de la rejection de l'infrarouge, la figure 3.7(b) montre qu'il reste tout de même une partie importante d'infrarouge réfléchi (15 % environ pour une lame). Ceci est dû au fait que ces lames sont traitées antireflet à  $20^\circ$  d'incidence rasante alors que pour en améliorer la réflectivité UVX, nous les utilisons sous  $10^\circ$ .

Les harmoniques sont réfléchies par les deux lames, tandis que l'infrarouge de génération est transmis et est bloqué par une plaque absorbante. Le faisceau de la voie sonde est transmis par la lame et recombinaison avec l'UVX. Il est possible d'inclure un filtre entre les deux lames, afin d'éliminer toute trace du faisceau infrarouge de génération et de filtrer le rayonnement harmonique. Le filtre est monté sur une tige en rotation qui peut être manipulée sous vide et permet donc d'effectuer des mesures avec ou sans filtre. Les bras de la ligne à retard ont une longueur d'environ 1.5 m, et la recombinaison s'effectue dans une enceinte sous vide. Un travail important de stabilisation du dispositif a été effectué. L'ensemble de la ligne à retard a été rendu solidaire par des rails métalliques. Les vibrations provenant de la pompe turbo-moléculaire située sous le jet de gaz sont amorties grâce à un soufflet à coupelles soudées (cela nécessite de lester la pompe, ou idéalement de l'ancrer au sol, pour que le soufflet ne soit pas complètement comprimé). Nous sommes parvenus à obtenir une stabilité correcte, mais qui s'est dégradée lors du remplacement d'une pompe turbomoléculaire du spectromètre d'électrons. L'utilisation de pompes sèches à paliers magnétiques sous le jet de génération, associé à une meilleure cohésion mécanique de l'ensemble de la ligne à retard (qui pourrait être disposée sur une unique table optique) devraient permettre d'obtenir une meilleure stabilité.

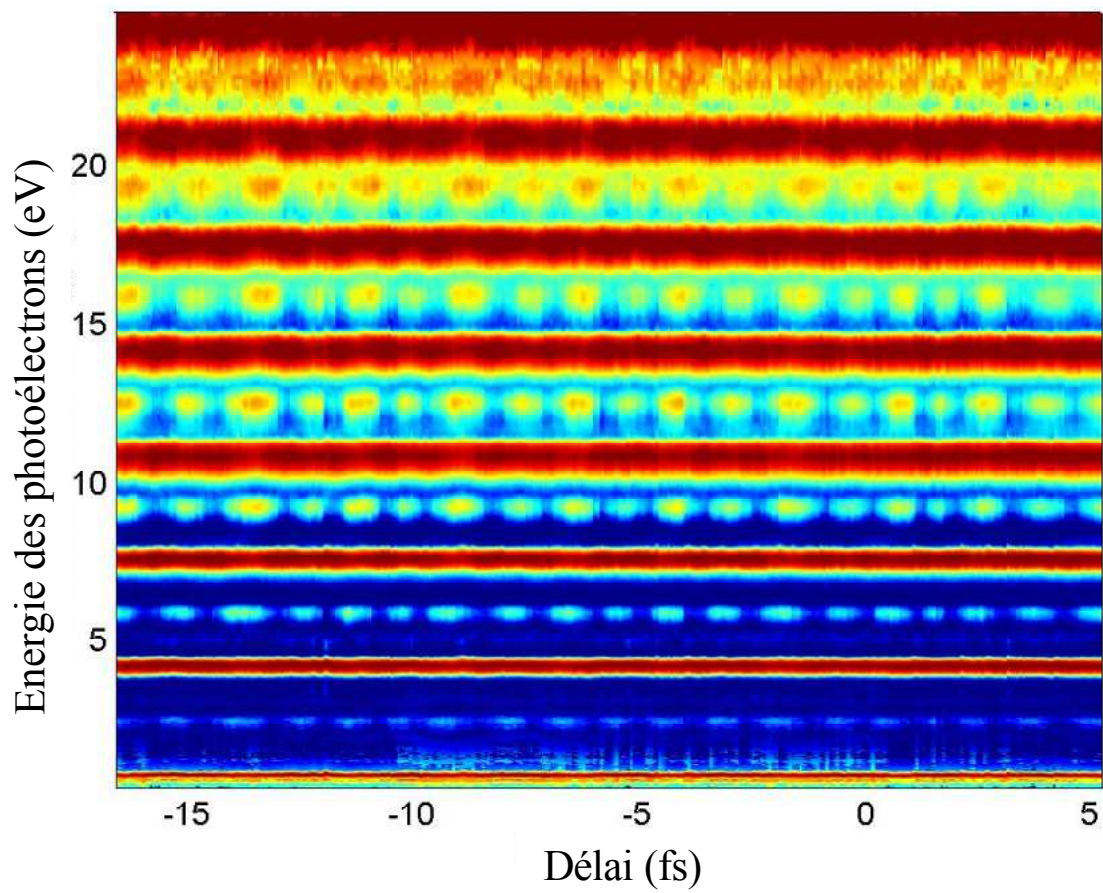
## 3.3 Reconstruction du train attoseconde

### 3.3.1 Analyse des données

La figure 3.8 présente une série de spectres de photoélectrons en fonction du délai entre les faisceaux infrarouge et UXV obtenu à Saclay en 2003 avec le dispositif de la figure 3.3. Les spectres correspondant à chaque délai sont normalisés. Les harmoniques sont



**Fig. 3.7:** (a) Photographie du montage de recombinaison des faisceaux UVX et infrarouge. Un filtre en aluminium amovible est présent entre les deux lames de silice. (b) Réflectivité et transmission de l'infrarouge (polarisation S) sur une lame de silice, en fonction de l'angle d'incidence rasante. (c) Réflectivité UVX mesurée (cercles) et donnée par le CXRO (ligne) de l'ensemble des deux lames (CXRO, 2005).



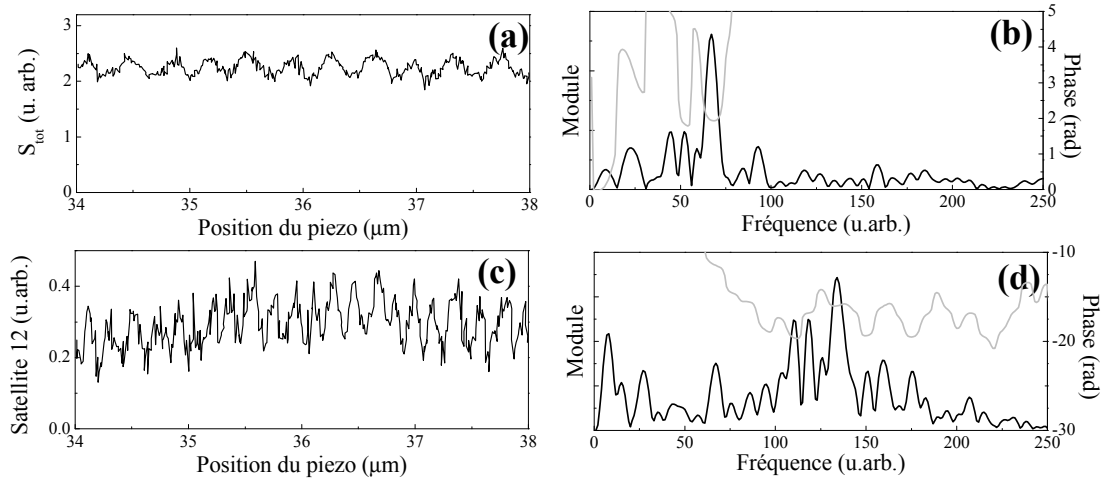
**Fig. 3.8:** Spectres de photoélectrons normalisés obtenus en générant et détectant dans l'argon, en fonction du délai entre infrarouge et harmoniques.

générées dans l'argon, à un éclairage de  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Le laser est focalisé 5 mm avant le jet de gaz. La détection est effectuée également dans l'argon. La première harmonique détectée est donc l'harmonique 11 et la figure présente les harmoniques 11 à 25. L'échelle de couleurs utilisée est saturée afin d'améliorer la visibilité, ce qui produit un très fort élargissement apparent des harmoniques les plus élevées. En fait, un élargissement existe effectivement sur le spectre en raison de la décroissance de la résolution du spectromètre lorsque l'énergie des électrons augmente, mais il est moins important que ne le laisse apparaître la figure. Afin de le minimiser, on peut appliquer un potentiel retardateur dans le tube de temps de vol du spectromètre pour ralentir les électrons et donc améliorer la résolution sur les hautes énergies, tout en perdant les électrons les moins énergétiques. Les mesures sur de larges bandes spectrales sont donc réalisées en plusieurs fois, avec des potentiels retardateurs croissants, et on concatène ensuite les phases mesurées sur les différentes pages.

Les oscillations des satellites sont clairement visibles sur la figure. Si l'on mesure le signal total de photoélectrons avant normalisation, on obtient la courbe de la figure 3.9(a). Le signal oscille à la fréquence laser lorsque le délai varie, ce qui se manifeste par la présence d'un pic à cette fréquence sur sa transformée de Fourier (TF) (figure 3.9(b)). Avant d'effectuer la TF, nous avons soustrait au signal sa composante continue, ce qui a pour effet d'éliminer la forte composante basse fréquence qui pourrait "noyer" le pic à  $\omega_0$ . L'oscillation du signal total est due à un phénomène d'interférence optique, et a été analysée par Dimu et al. (2003). Dans notre expérience, les deux faisceaux de génération et d'habillage se recouvrent dans le jet de génération. Même si le faisceau d'habillage est trop faible pour générer des harmoniques, il peut interférer avec le faisceau principal. La variation du délai induit donc des modulations de l'éclairage infrarouge, qui sont faibles car les deux faisceaux ont des éclairages très différents. Cependant, la forte non-linéarité de la génération d'harmoniques augmente cet effet de modulation. Nous verrons dans la suite qu'il peut être utile pour obtenir une référence de phase dans la mesure. Pour effectuer l'analyse des amplitudes des satellites, nous normalisons chaque spectre mesuré par le signal total, comme sur la figure 3.8.

La détermination des phases relatives des harmoniques repose sur la mesure de la phase de l'oscillation à  $2\omega_0$  des satellites. Nous présentons sur la figure 3.9(c) l'amplitude du satellite 12 en fonction du retard entre faisceau d'habillage et faisceau de génération. Nous effectuons les mesures de phases par TF complexe. Le module de la TF est présenté sur la figure 3.9(d) et comporte deux pics correspondant à la fréquence laser et à son double. Il existe d'autres pics parasites autour de  $2\omega_0$  que nous attribuons à des instabilités du délai dans cette mesure. L'avantage du traitement par TF est qu'il permet de s'affranchir de ce bruit, qui apparaît à des fréquences différentes. Il est remarquable que l'oscillation des satellites à  $\omega_0$  persiste même après normalisation du signal total. Nous avons déjà noté qu'une faible partie du faisceau annulaire pouvait être diffusée dans le jet de génération et traverser le diaphragme. Ce faisceau contribue à la création





**Fig. 3.9:** Analyse de la mesure de phases relatives de la figure 3.8. (a) : Signal total de photoélectrons en fonction du délai. (b) Module et phase de la transformée de Fourier du signal total. (c)-(d) Signal et transformée de Fourier du satellite 12.

de satellites et interfère avec le faisceau d’habillage, produisant la modulation à  $\omega_0$ . Cet effet n’affecte pas l’oscillation à  $2\omega_0$  qui nous intéresse et ne gêne donc pas la mesure des phases relatives.

Afin d’obtenir la différence de phase entre harmoniques consécutives, nous moyennons la valeur de la phase de la TF autour de  $2\omega_0$ , et mesurons ainsi  $\varphi_{sat} = \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at} + 2\varphi_0$ . Nous pouvons effectuer la correction de phase atomique, qui a été calculée, mais il reste à déterminer une référence de phase  $\varphi_0$ .

### 3.3.2 Référence de phase

La référence de phase  $\varphi_0$  correspond à un terme de différence de phase constante entre harmoniques, c’est à dire à une relation de phase linéaire et donc à un décalage temporel. Elle n’affecte pas la durée des impulsions attosecondes reconstruites. En revanche, en vue d’accéder à la synchronisation de l’émission attoseconde par rapport au laser, il est nécessaire de la déterminer.

Nous mesurons pour cela la phase  $\varphi_{Stot}$  de l’oscillation à  $\omega_0$  du signal total (figure 3.9(b)), qui provient de l’interférence entre les deux faisceaux infrarouges dans le jet de génération. Elle fournit une référence de phase absolue entre faisceaux de génération et d’habillage. On peut alors effectuer un changement de l’origine des délais afin de rendre l’oscillation du signal total maximale en  $\tau = 0$ . Les phases des satellites étant mesurées par rapport au faisceau d’habillage, on accède ainsi à la synchronisation des harmoniques avec le faisceau infrarouge de génération *dans le jet cible du spectromètre*.

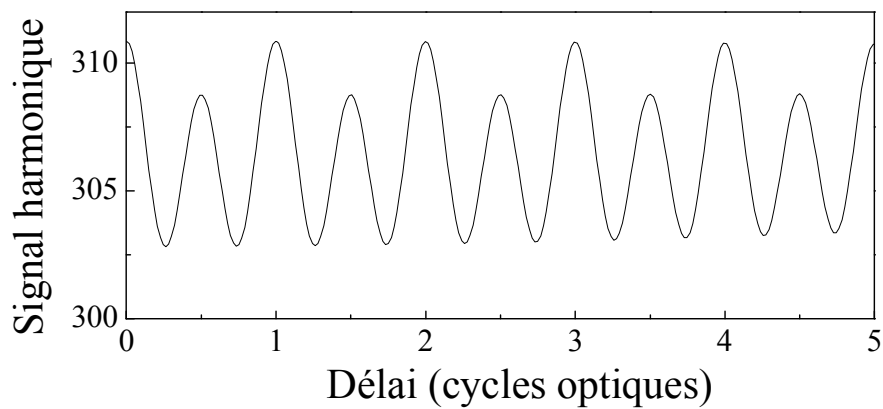
Cette synchronisation pourrait différer de celle *dans le jet de génération* si les faisceaux infrarouge et UVX subissaient des déphasages supplémentaires entre la génération et la détection. Cependant, [Dinu et al. \(2003\)](#) ont montré que ces derniers effets étaient très faibles, et l'on considèrera donc que la synchronisation des harmoniques avec l'infrarouge au jet de détection est la même que dans le jet de génération. Concrètement, le changement d'origine des délais revient à soustraire aux phases des satellites mesurées à  $2\omega_0$  un terme  $2\varphi_{Stot}$ .

La modulation du signal total par les effets d'interférences pouvant entraîner une perturbation significative de la génération d'harmoniques si elle est trop importante, nous avons dans une deuxième phase de l'expérience tenté de la minimiser en croisant les polarisations des faisceaux de génération et d'habillage. Nous avons utilisé pour cela une lame demi onde placée sur l'un des bras de la ligne à retard. Les mesures effectuées dans ces conditions montrent qu'il subsiste dans la plupart des cas une faible composante d'oscillation à  $\omega_0$  dans le signal total, qui est probablement due à une interférence optique résiduelle en raison d'un croisement non parfait des polarisations. Il apparaît également sur le signal total une oscillation à  $2\omega_0$ . La superposition des deux champs infrarouges de polarisations croisées est en effet un champ dont la polarisation dépend du délai, et varie de linéaire à elliptique. Or, la génération d'harmoniques est très sensible à l'état de polarisation du laser : elle décroît avec l'ellipticité  $\epsilon$  comme  $e^{-\beta\epsilon^2}$ , où  $\beta$  est typiquement de l'ordre de 30 pour des harmoniques du plateau ([Budil et al., 1993](#)). Par conséquent, le signal total harmonique subit une modulation lorsque le délai varie, qui est due au changement d'ellipticité. Nous en avons calculé l'allure à partir d'un modèle simple (figure 3.10). Nous superposons une impulsion principale et une impulsion 50 fois plus faible, avec un retard variable. Les directions de polarisation des deux impulsions font un angle de  $88^\circ$ . Pour chaque retard, l'ellipticité instantanée du champ infrarouge est calculée, et on en déduit le signal harmonique. Le signal comporte bien une oscillation à  $2\omega_0$ , qui provient de la modulation de l'ellipticité, et une modulation à  $\omega_0$  qui disparaît lorsque les polarisations sont exactement croisées, et qui résulte donc d'une interférence optique. Dans ces conditions, on peut utiliser indifféremment comme référence la phase de l'oscillation à  $\omega_0$  ou de celle à  $2\omega_0$ .

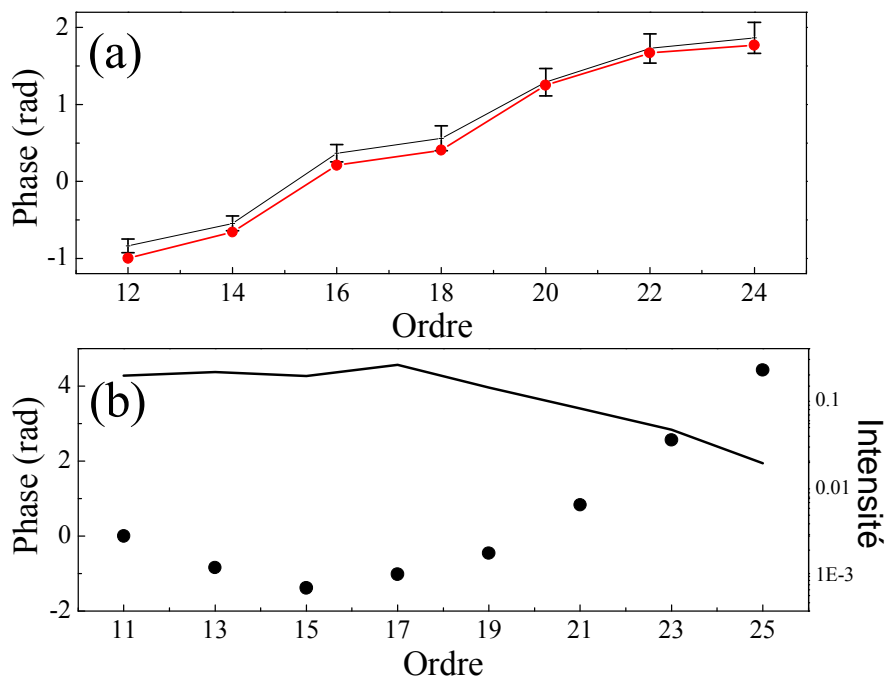
#### 3.3.3 Reconstruction du train d'impulsions attosecondes

Les phases des satellites mesurées à partir des données de la figure 3.8 sont présentées sur la figure 3.11(a) en fonction de l'ordre. L'incertitude sur la mesure provient de la variation de la phase mesurée sur la transformée de Fourier autour de la fréquence d'oscillation. Nous attribuons donc à la phase de l'oscillation du satellite une incertitude égale à l'écart type de la moyenne effectuée pour la mesurer. Il faut y ajouter un terme d'incertitude constant dû à la détermination de la référence de phase  $\varphi_0$ , que l'on évalue de la même manière. Cependant, l'erreur commise sur cette dernière mesure

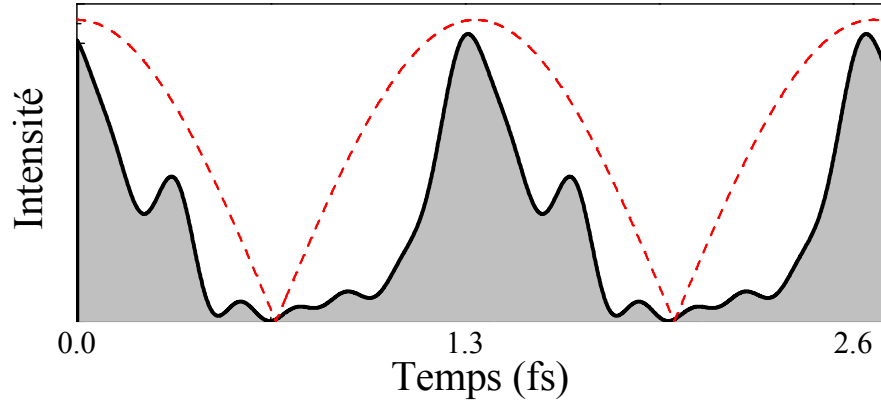




**Fig. 3.10:** Simulation du signal harmonique résultant de la superposition de deux impulsions de polarisations quasi-croisées et d'amplitudes très différentes.



**Fig. 3.11:** (a) Phases des satellites mesurées avec incertitude (barres d'erreurs) et corrigées par les phases atomiques (points). (b) Phases (points) et amplitudes (ligne) des harmoniques.



**Fig. 3.12:** Train d’impulsions attosecondes correspondant à la superposition des harmoniques 11 à 25 générées dans l’argon, à un éclairage de  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. La ligne discontinue représente la valeur absolue du champ infrarouge de génération.

n’affecte pas le profil temporel du train d’impulsions attosecondes, mais simplement sa synchronisation par rapport au champ fondamental.

La correction de phases atomiques permet de déterminer les différences de phases  $\varphi_{q+2} - \varphi_q$ . On obtient ensuite par sommation les phases  $\varphi_q$  des harmoniques (figure 3.11(b)). Lors de cette dernière opération, la phase de l’harmonique 11 est fixée arbitrairement à 0. La mesure RABBITT ne permet en effet d’accéder qu’à des différences de phases, et il est nécessaire de fixer une référence. Cette phase constante correspond à une phase absolue de l’oscillation du champ UVX par rapport à l’enveloppe de l’impulsion attoseconde.

Les amplitudes relatives des harmoniques peuvent être mesurées sur un spectre de photoélectrons acquis en l’absence de faisceau d’habillage, ou de manière approximative en moyennant sur l’ensemble des délais d’une trace comme celle de la figure 3.8. On prend ensuite en compte la section efficace d’ionisation, et éventuellement la réflectivité du miroir torique (qui est quasiment constante sur la bande d’énergie considérée), et l’on obtient les amplitudes des harmoniques au niveau du jet de génération (figure 3.11(b)).

Le train d’impulsions attosecondes est reconstruit par sommation de Fourier, à partir de la formule 3.1. Les variations de phases relatives des harmoniques entre le jet de génération et la détection sont négligeables puisque la dispersion est quasiment nulle lors de la réflexion sur le torique. Le train obtenu correspond donc au profil temporel de la superposition des harmoniques 11 à 25 dans le jet de génération. Il est constitué d’impulsions de durée 480 as à mi hauteur, séparées d’une demi période laser. Les impulsions sont émises au voisinage des maxima du champ infrarouge (figure 3.12).

Le train d'impulsions attosecondes obtenu est bien plus régulier que la réponse de l'atome unique présentée au chapitre 1. Le profil temporel présente une impulsion principale par demi-cycle optique. La durée que l'on obtiendrait si les harmoniques étaient parfaitement en phase serait  $T_0/16 \approx 167$  as. Nous sommes loin de cette limite de Fourier, ce qui signifie que les harmoniques ne sont pas bien synchronisées à l'échelle attoseconde. Nous étudions en détail cette synchronisation dans le chapitre suivant.





## Chapitre 4

# Synchronisation attoseconde des harmoniques

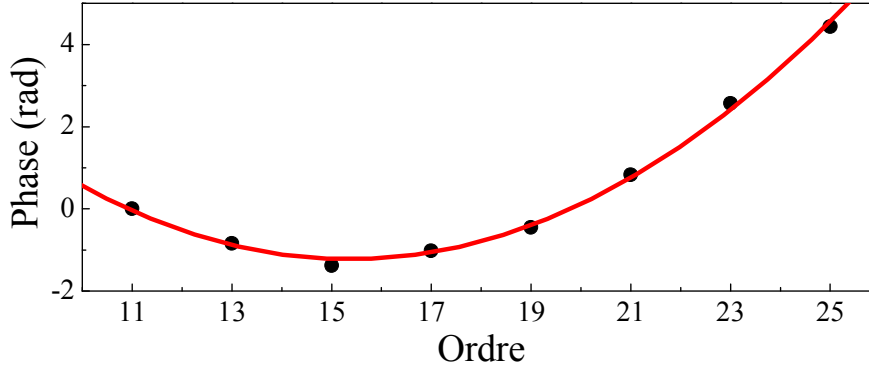
Nous avons présenté au chapitre précédent une mesure des phases relatives des harmoniques par la technique RABBITT, qui nous a permis de caractériser un train d'impulsions attosecondes généré dans l'argon. Les impulsions reconstruites présentent de fortes distorsions et un écart important à la limite de Fourier. Nous analysons en détail dans ce chapitre les phases relatives des harmoniques afin d'identifier l'origine de telles désynchronisations dans l'émission. Nous effectuons une étude systématique de la synchronisation des harmoniques générées dans divers gaz rares ainsi que dans des molécules. Nous étudions l'influence des propriétés du laser générateur (éclairage, longueur d'onde, état de polarisation, conditions de focalisation) afin de déterminer les paramètres optimaux pour la génération d'impulsions attosecondes brèves.

### 4.1 Dérive de fréquence attoseconde de l'émission harmonique

#### 4.1.1 Mise en évidence

Nous reprenons l'étude de la structure temporelle des impulsions attosecondes générées dans l'argon à un éclairage de  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  que nous avons commencé au chapitre 3. Le profil temporel obtenu en superposant 8 harmoniques est constitué d'impulsions dont la durée est plus de deux fois la limite de Fourier. Cet élargissement temporel est la signature de l'existence de termes non-linéaires dans la relation de phase entre harmoniques, c'est à dire d'une non synchronisation des différentes harmoniques.

La phase harmonique mesurée par la technique RABBITT est représentée en fonction



**Fig. 4.1:** Phases spectrales des harmoniques générées dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. La ligne continue est un ajustement polynomial d'ordre 2 des phases.

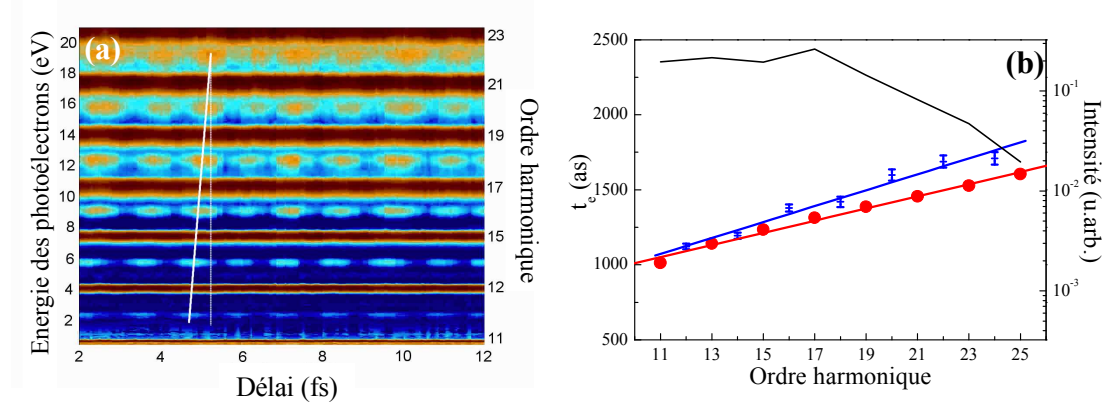
de l'ordre sur la figure 4.1. Il apparaît clairement qu'elle n'est pas linéaire. Un ajustement polynomial d'ordre 2 donne une parabole remarquablement proche des résultats expérimentaux : la phase spectrale entre harmoniques est quadratique.

Afin d'analyser ce résultat en termes de synchronisation, nous calculons l'instant d'émission associé à chaque harmonique. Il est défini comme étant la dérivée de la phase spectrale, et est équivalent à un retard de groupe :

$$t_e(q+1) = \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}(q+1) \approx \frac{\varphi_{q+2} - \varphi_q}{2\omega_0} \quad (4.1)$$

La grandeur ainsi évaluée est associée à un ordre harmonique pair, et il faut la considérer comme reflétant le comportement moyen des harmoniques adjacentes. Cet instant d'émission est, au terme de phase atomique près, proportionnel à la phase de l'oscillation du satellite dans la mesure RABBITT. Ainsi, une trace RABBITT permet une visualisation directe de la synchronisation des harmoniques. La figure 4.2(a) présente un agrandissement d'une partie de la trace obtenue au chapitre précédent. Afin d'évaluer visuellement la phase des satellites, nous repérons la position des maxima de l'oscillation, reliés par des tirets blanc sur la figure, tandis que la ligne continue est verticale. Les satellites n'oscillent pas en phase mais présentent un déphasage linéaire en fonction de l'énergie. En d'autres termes, les harmoniques élevées sont émises après les harmoniques faibles, avec une dérive de fréquence linéaire positive dans l'émission. Cette visualisation de la dérive de fréquence sur la trace 2D rappelle celle que l'on peut effectuer dans certaines mesures FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*) (Trebbino, 2000). La trace RABBITT est en fait un spectrogramme du train d'impulsions attosecondes, comme nous le verrons au chapitre 5.

Après correction des phases atomiques, on obtient les instants d'émission des harmoniques, qui s'étalent entre 1100 et 1700 as avec une variation linéaire en fonction de l'ordre (figure 4.2(b)). Il est possible de quantifier la désynchronisation des harmoniques



**Fig. 4.2:** (a) Visualisation sur la trace RABBITT et (b) instants d'émission des harmoniques dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les croix sont les valeurs mesurées, et les points les calculs théoriques pour les trajectoires courtes. Les lignes continues sont des ajustements linéaires des instants d'émission.

en calculant la différence entre les instants d'émission de deux harmoniques consécutives :

$$\Delta t_e = t_e(q+1) - t_e(q-1) \approx 2\omega_0 \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2} \quad (4.2)$$

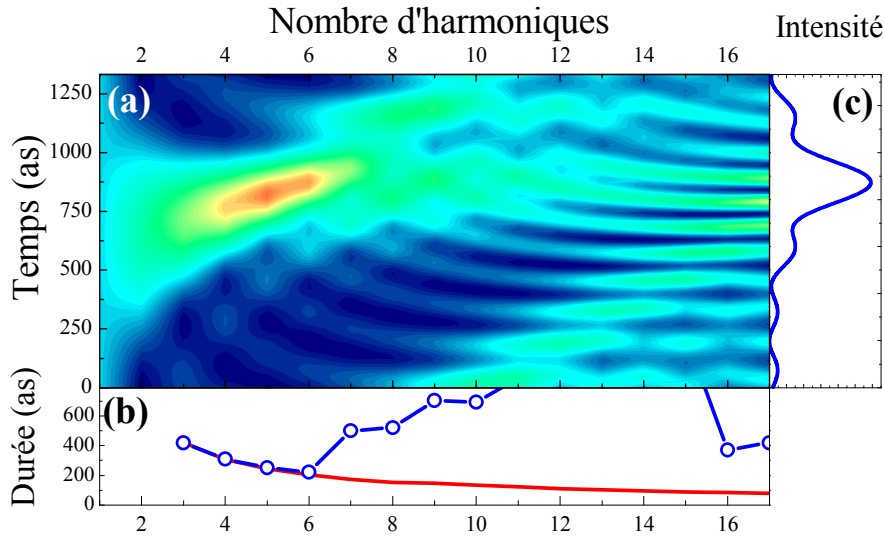
Ce paramètre est proportionnel à la dérivée seconde de la phase spectrale, c'est à dire au *chirp*, ou dérive de fréquence, de l'émission. Il est mesuré à partir de la pente d'un ajustement linéaire des instants d'émission, présenté sur la figure 4.2(b). On obtient une désynchronisation de  $106 \pm 8$  as.

#### 4.1.2 Conséquences sur la structure attoseconde

Lors de la génération d'harmoniques dans l'argon à un éclairement de  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, il existe donc un décalage temporel de plus de 100 as entre l'émission de deux harmoniques successives à l'intérieur du cycle optique. On s'attend à ce que cette désynchronisation ait un effet dévastateur sur le profil temporel des impulsions attosecondes.

Lorsque l'on superpose plusieurs harmoniques, il y a une compétition entre deux phénomènes du point de vue de la durée des impulsions attosecondes obtenues. D'une part l'augmentation de la bande spectrale tend à réduire la durée des impulsions. Ainsi, dans le cas d'une synchronisation parfaite celle-ci varierait comme  $\tau_N = T_0/2N$ ,  $N$  étant le nombre d'harmoniques superposées. D'autre part, les instants d'émission des différentes harmoniques étant différents, il est clair qu'un élargissement temporel se produira lorsque la largeur spectrale sera trop grande. Afin de visualiser les effets de ces deux phénomènes, nous représentons sur la figure 4.3(a) les profils temporels correspondant à la superposition d'un nombre  $N$  croissant d'harmoniques, dans le cas où





**Fig. 4.3:** (a) Profils temporels normalisés, reconstruits en superposant  $N$  harmoniques de même amplitude et avec une dérive de fréquence  $\Delta t_e = 106$  as. (b) Cercles : durée à mi-hauteur de l’impulsion attoseconde en fonction de  $N$ . La ligne continue présente la limite de Fourier. (c) Profil temporel optimal correspondant à  $N=6$  harmoniques.

ces harmoniques sont émises avec une désynchronisation de 106 as. Nous restreignons l’observation à une seule impulsion du train, et normalisons chaque profil temporel à une même intensité totale de telle sorte qu’une durée brève est associée à une valeur crête élevée. La durée à mi-hauteur de chaque impulsion est mesurée et représentée en fonction de  $N$  sur la figure 4.3(b), avec la durée que l’on obtiendrait si les impulsions étaient limitées par transformée de Fourier. Lorsque le nombre d’harmoniques superposées est faible, la durée est très proche de la limite de Fourier, et diminue si  $N$  augmente. L’effet de la dérive de fréquence est alors quasiment négligeable. Cependant, quand  $N$  atteint 7, il se produit un brusque élargissement temporel, accompagné de fortes distorsions de l’impulsion attoseconde. La situation empire pour des nombres d’harmoniques encore supérieurs. Il existe donc un nombre optimum d’harmoniques à superposer pour obtenir des impulsions attosecondes brèves, qui vaut 6 dans le cas d’une désynchronisation de 106 as. Nous représentons le profil temporel correspondant sur la figure 4.3(c). Au delà de  $N_{opt} = 6$ , l’effet de la désynchronisation des harmoniques l’emporte sur la réduction de durée associée à l’augmentation de la bande spectrale. Ceci explique la durée de 480 as mesurée en superposant 8 harmoniques au chapitre précédent. Ce phénomène a des conséquences désastreuses quant aux perspectives de génération d’impulsions extrêmement brèves : alors que l’on sait générer jusqu’à plusieurs centaines d’harmoniques, il semble impossible dans ces conditions d’obtenir des impulsions courtes en en superposant plus de 6.

La dérive de fréquence linéaire dans l’émission induit d’importantes distorsions du profil

temporel, avec notamment des rebonds et des impulsions multiples. Avec des impulsions gaussiennes comme la plupart des impulsions lasers, une phase spectrale d'ordre 2 n'entraîne pas l'apparition de telles structures mais simplement un élargissement temporel. La différence provient du fait que le spectre de chaque impulsion attoseconde du train n'a pas un profil gaussien. Il s'agit plutôt d'un spectre rectangulaire dont la largeur est fixée par les bornes choisies pour reconstruire le profil temporel. Il n'y a donc pas d'incompatibilité entre l'observation de rebonds dans la structure temporelle et une phase spectrale d'ordre 2.

Il est remarquable que lorsque le nombre d'harmoniques superposées est inférieur à  $N_{opt}$ , l'effet de la dérive de fréquence soit quasiment invisible sur les profils temporels. Lors des mesures RABBITT effectuées en 2001 par P.M. Paul *et al.*, une durée d'impulsion de 250 as a été mesurée pour 5 harmoniques, ce qui est très proche de la limite de Fourier (Paul *et al.*, 2001). Cela ne signifie pas pour autant qu'il n'y a pas de dérive de fréquence dans l'émission. En analysant les phases spectrales mesurées dans cette expérience, on peut voir apparaître un terme quadratique, qui n'avait pas été remarqué à l'époque car il n'avait pas de conséquence sur le profil temporel (Agostini and Gobert, 2004). Les conditions de génération d'harmoniques de cette expérience étaient très proches de la mesure présentée ici. C'est la possibilité de réaliser des mesures larges bandes qui nous a permis de rendre la dérive de fréquence flagrante, puisque nous avons mesuré un nombre d'harmoniques supérieur à  $N_{opt}$ . Cette dérive de fréquence a été également mesurée sur 5 harmoniques, mais non remarquée, par Dinu *et al.* (2003) et Aseyev *et al.* (2003). Sophie Kazamias l'a identifiée dans les données de (Dinu *et al.*, 2003) et en a effectué une analyse théorique semi-classique parallèlement à notre travail (Kazamias and Balcou, 2004).

La valeur de la durée optimale, ainsi que le nombre optimal d'harmoniques superposables, dépendent fortement de la dérive de fréquence. Un calcul simple basé sur des profils d'impulsions gaussiens montre qu'en présence d'une dérive de fréquence  $\Delta t_e$ , la largeur spectrale conduisant aux impulsions les plus brèves varie comme  $1/\sqrt{\Delta t_e}$  tandis que la durée optimale des impulsions évolue comme  $\sqrt{\Delta t_e}$ . Nous pouvons considérer que les tendances seront les mêmes avec des harmoniques (spectres carrés), et avons vérifié cela numériquement. Par conséquent, la génération d'impulsions attosecondes plus brèves ne sera possible qu'en diminuant la dérive de fréquence  $\Delta t_e$ . Il est donc nécessaire de comprendre l'origine de la désynchronisation dans l'émission afin de tenter de la minimiser.

## 4.2 Etude théorique de la synchronisation

### 4.2.1 Instants d'émission des harmoniques

L'étude théorique quantique que nous avons présentée au chapitre 1 a permis de calculer les instants complexes d'ionisation et de recombinaison des électrons. Nous analysons dans ce paragraphe leur lien avec l'instant d'émission associé à chaque harmonique, défini comme la dérivée de la phase harmonique :  $t_e(\omega_q) = \partial\varphi/\partial\omega$ .

Rappelons que la phase du dipôle harmonique  $\varphi$  est donnée par l'équation suivante :

$$\varphi_q^j = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[ \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2}{2} + I_p \right] dt \quad (4.3)$$

Sa dérivée s'écrit :

$$\frac{\partial\varphi}{\partial\omega} = \frac{\partial t_r}{\partial\omega} \frac{\partial\varphi}{\partial t_r} + \frac{\partial t_i}{\partial\omega} \frac{\partial\varphi}{\partial t_i} + \frac{\partial \vec{p}}{\partial\omega} \frac{\partial\varphi}{\partial \vec{p}} \quad (4.4)$$

Nous avons montré à partir des trois équations de point selle 1.18 à 1.20 et de l'équation 4.3 que cette expression se simplifie en  $t_e = \frac{\partial\varphi}{\partial\omega} = \Re(t_r)$  (Mairesse et al. (2003), *Supporting Online Material*) :

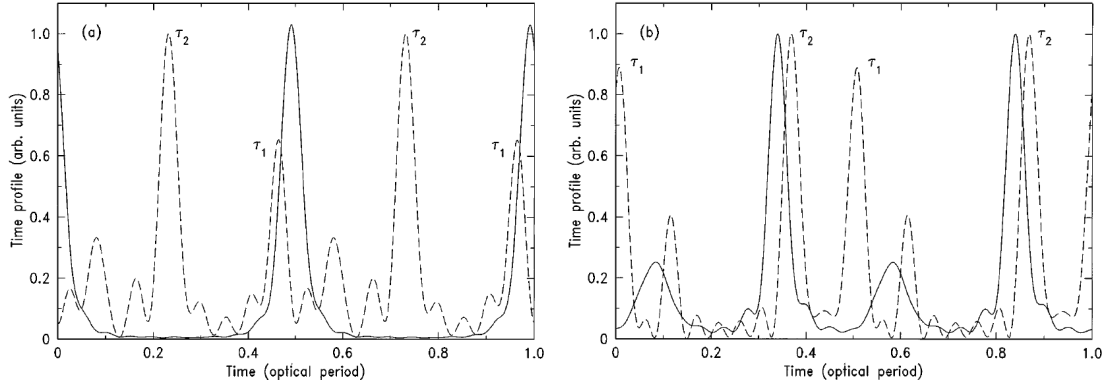
***L'instant d'émission d'une harmonique est la partie réelle de l'instant complexe de recombinaison de l'électron sur la trajectoires correspondante.***

Dans le plateau, chaque harmonique est donc associée à deux instants d'émission correspondant aux deux trajectoires électroniques courte et longue. Les études théoriques ont montré la possibilité de sélectionner la contribution d'une seule famille de trajectoires pour obtenir un profil temporel attoseconde plus régulier. Nous en exposons les principaux résultats dans le paragraphe suivant.

### 4.2.2 Sélection des trajectoires courtes

Le profil temporel théorique présenté en ligne discontinue sur la figure 4.4 est la réponse d'un atome unique au champ infrarouge intense, calculée par Antoine et al. (1996b) dans l'approximation du champ fort. Il présente deux impulsions attosecondes principales par demi-cycle optique, caractéristiques de l'existence de deux familles de trajectoires électroniques dans le continuum. Nous nous intéressons ici aux moyens d'éliminer les contributions d'une de ces familles afin d'obtenir une impulsion unique par demi-période laser.

Expérimentalement, le milieu émetteur est un jet de gaz constitué d'une multitude d'atomes dont les champs rayonnés  $\mathbf{e}_q$  vont s'additionner de manière cohérente pour construire le champ électrique macroscopique  $\mathbf{E}_q : \mathbf{E}_q = \sum_{\text{atomes}} \mathbf{e}_q$ .



**Fig. 4.4:** Profils temporels théoriques de la superposition des harmoniques 41 à 61 générées dans le néon par une impulsion laser d'éclairement au foyer  $6.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Les lignes discontinues représentent la réponse de l'atome unique, et les lignes continues la réponse macroscopique. Le laser est focalisé 2 mm avant le jet sur la figure (a), et dans le jet sur la figure (b). D'après [Antoine et al. \(1996b\)](#)

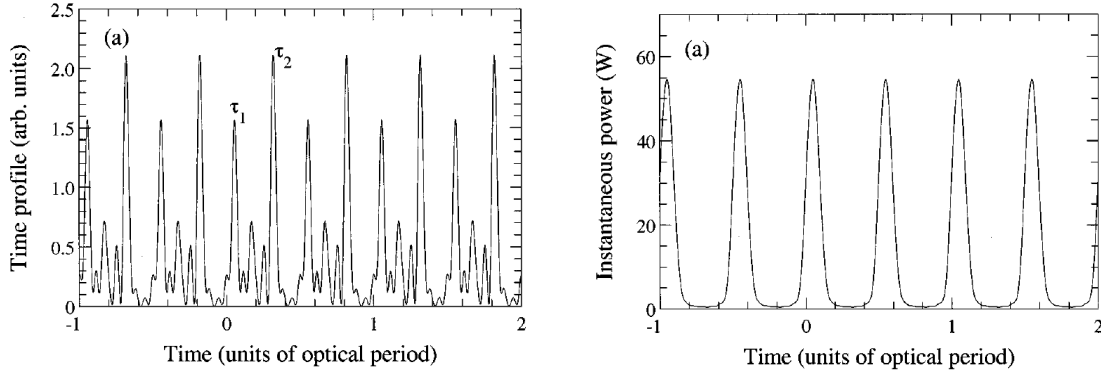
Le détail des interférences entre les contributions microscopiques dépend des phases relatives des différents émetteurs, et donc de la géométrie de l'interaction avec le laser. Il s'agit d'un problème d'accord de phase dans lequel la structure spatiale du faisceau laser joue un rôle essentiel.

La condition générale d'accord de phase de la génération d'harmoniques d'ordre élevé peut s'écrire ([Balcou et al., 1997](#)) :

$$\mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_1 + \nabla\varphi_q \quad (4.5)$$

où  $\varphi_q$  est la phase du moment dipolaire harmonique  $q$ . Or, nous avons vu au chapitre 1 que la phase du dipôle harmonique variait approximativement de manière linéaire avec l'éclairement :  $\varphi_q = -\alpha_q^j I$ . La focalisation du laser dans le milieu générateur peut induire d'important gradients longitudinaux et transverses d'éclairements, et va donc fortement influencer l'accord de phase. De plus, comme les coefficients  $\alpha_q^j$  sont très différents selon la famille de trajectoires considérée, l'accord de phase sera différent pour les trajectoires courtes et longues. Cet effet peut être exploité en ajustant la géométrie de génération afin de sélectionner les contributions d'une famille.

L'étude théorique de la structure attoseconde du rayonnement harmonique par Philippe Antoine *et al.* a montré qu'il était possible de sélectionner macroscopiquement les contributions des trajectoires courtes ([Antoine et al., 1996b](#)). Le calcul du champ macroscopique rayonné, obtenu en propageant les contributions microscopiques  $\mathbf{e}_q$  grâce aux équations de Maxwell, révèle une grande sensibilité à la position relative du foyer laser et du jet. Les auteurs montrent ainsi que le profil temporel du champ macroscopique correspondant à la superposition des harmoniques 41 à 61 ne comporte qu'une



**Fig. 4.5:** (a) Réponse de l'atome unique correspondant à la superposition des harmoniques 41 à 61 générées dans le néon par une impulsion laser de  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. (b) Réponse macroscopique obtenue avec un laser focalisé 2 mm avant le jet et d'éclairement  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans le milieu. D'après [Antoine et al. \(1997\)](#)

impulsion par demi-période laser lorsque le laser est focalisé suffisamment avant le jet (figure 4.4(a)). Cette impulsion a quasiment la même synchronisation par rapport au champ fondamental que dans la réponse de l'atome unique : elle est émise aux alentours de  $t = 0.5$  cycle optique. Cela signifie que dans ces conditions, les trajectoires courtes sont accordées en phase, tandis que les contributions microscopiques des trajectoires longues interfèrent destructivement. En revanche, si le faisceau laser est focalisé au centre du jet, les contributions des deux familles de trajectoires sont présentes sur le profil temporel, avec une prédominance des trajectoires longues (figure 4.4(b)).

Il est important de noter que dans le cas où la sélection des contributions des trajectoires courtes est effectuée par accord de phase, la synchronisation des impulsions attosecondes par rapport au champ laser reste très proche de celle de la réponse de l'atome unique. D'autre part, la durée d'impulsion est dans ce calcul également pratiquement inchangée par la propagation. Il semble donc que la propagation joue le simple rôle de filtre temporel. Cet aspect est essentiel puisqu'il montre que l'on peut accéder macroscopiquement à (une partie de) la réponse d'un atome unique en champ fort. Un bémol à cette affirmation est apporté par l'article suivant de [Antoine et al. \(1997\)](#). Les calculs sont effectués dans des conditions similaires, à un éclairement légèrement différent. Les résultats présentés sur la figure 4.5 confirment l'efficacité de la sélection des trajectoires courtes, ainsi que la stabilité de la synchronisation par rapport au fondamental. En revanche, un élargissement du profil temporel de l'impulsion correspondant aux trajectoires courtes apparaît : la durée passe d'environ 170 as dans la réponse atome unique à 300 as sur le profil macroscopique. Cet effet, qui est en contradiction avec les données de ([Antoine et al., 1996b](#)), n'est pas discuté. Des calculs récents effectués par Thierry Auguste sont en accord avec le second article ([Antoine et al., 1997](#)), et il semble que les résultats présentés dans ([Antoine et al., 1996b](#)) com-

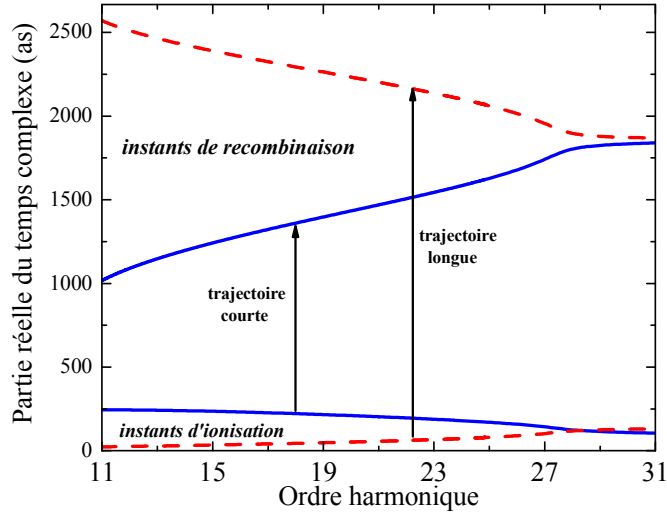
portaient une erreur dans l'intégration spatiale. Ainsi, selon les calculs macroscopiques dans l'approximation du champ fort, la sélection de trajectoire par accord de phase s'accompagnerait d'un élargissement temporel. Nous discuterons de cet effet dans la comparaison avec l'expérience.

Dans les premières mesures RABBITT qui ont été effectuées (Paul et al., 2001; Aseyev et al., 2003; Dinu et al., 2003), ainsi que dans celles que nous avons présentées au début du chapitre une seule impulsion attoseconde par demi-cycle optique est présente. Le faisceau laser est en effet focalisé un peu avant le jet de gaz de manière à effectuer la sélection des trajectoires courtes. Cette opération permet à la fois d'obtenir un train d'impulsions attosecondes plus régulier, et du point de vue fondamental d'étudier en détail le comportement d'une famille de trajectoires.

### 4.2.3 Comparaison entre théorie et expérience

Les résultats du calcul quantique des instants d'émission dans l'argon à un éclaircissement de  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ont été présentés au chapitre 1 et sont reproduits sur la figure 4.6. Les instants d'émission associés aux deux trajectoires sont clairement séparés dans le plateau : les trajectoires courtes émettent autour de 1500 as au milieu du plateau, tandis que l'émission des longues est plutôt vers 2300. Cette séparation explique la présence de deux impulsions par demi-cycle optique dans les calculs de Antoine et al. (1996b), séparées d'environ 0.3 cycle optique, c'est à dire 800 as. Dans la coupure, aux alentours de l'ordre 35, les deux familles de trajectoires se rejoignent. L'instant d'émission devient constant, ce qui est également cohérent avec les calculs de Antoine et al. (1996b) : les harmoniques sont donc synchronisées dans la coupure.

Dans le plateau, il existe une désynchronisation importante des harmoniques au sein de chaque famille de trajectoire. Le comportement de  $t_e$  en fonction de l'ordre est quasi-linéaire, avec une pente positive pour les trajectoires courtes et négative pour les longues. Ainsi, pour les trajectoires courtes, les harmoniques les plus faibles sont émises avant les plus élevées. Ce résultat concorde avec les observations expérimentales que nous avons effectuées. Afin de quantifier cette comparaison, nous avons représenté sur la figure 4.2(b) les instants d'émission calculés pour la trajectoire courte. L'accord entre théorie et expérience est bon. Un ajustement linéaire des données théoriques permet d'évaluer la désynchronisation entre deux harmoniques successives :  $\Delta t_e^{th} = 81 \pm 3$  as. Cette valeur est légèrement inférieure au  $\Delta t_e^{exp} = 106$  as obtenu dans la mesure. Néanmoins, il faut garder à l'esprit que le modèle que nous utilisons est un calcul de la réponse d'un atome unique. Nous considérons que le seul effet de la propagation est de sélectionner les contributions des trajectoires courtes. De plus, le calcul est effectué pour une unique valeur d'éclaircissement, que nous estimons être l'éclaircissement crête du laser. Expérimentalement, la mesure est une moyenne temporelle et spatiale et fait donc



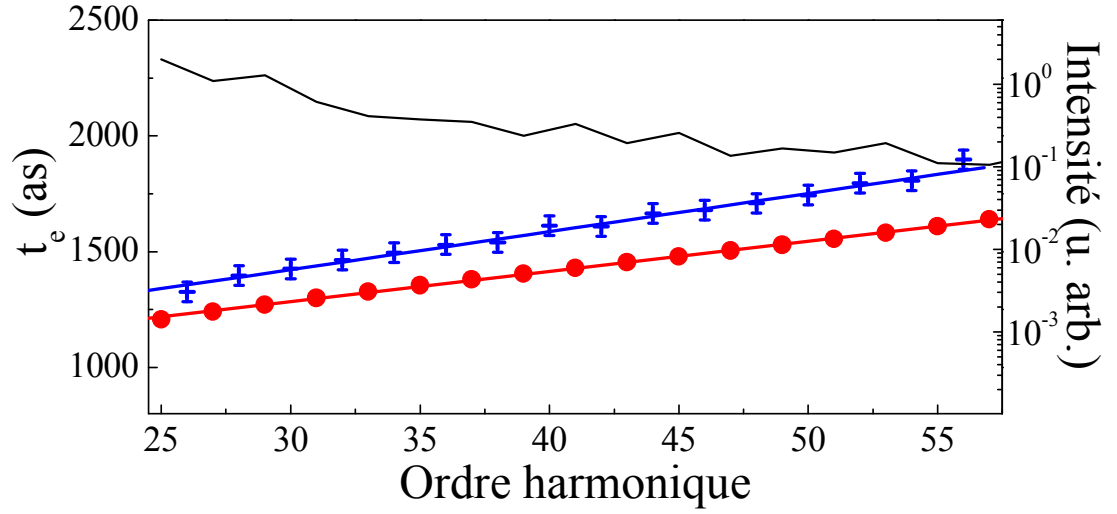
**Fig. 4.6:** Partie réelle des temps complexes d'ionisation et de recombinaison calculés dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les lignes continues sont les résultats pour les trajectoires courtes, et les pointillés pour les longues.

intervenir un éclairage effectif plus faible, ce qui peut expliquer certains écarts entre théorie et expérience comme nous le verrons plus tard. L'accord entre les mesures et les valeurs calculées est donc remarquable. En particulier, le fort élargissement temporel observé macroscopiquement dans les calculs de [Antoine et al. \(1997\)](#) n'apparaît pas ici. Afin de vérifier la généralité de cette conclusion, il est nécessaire de réaliser une étude systématique des instants d'émission en fonction de l'ordre harmonique dans diverses conditions de génération.

## 4.3 Visualisation des recombinaisons électroniques

### 4.3.1 Mesure large bande

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé permet d'effectuer des mesures large bande spectrale, grâce à la bonne réflectivité du miroir en platine sous incidence rasante. Nous avons donc tenté de vérifier l'accord entre théorie et expérience sur un grand nombre d'harmoniques du plateau en générant dans le néon à un éclairage de  $3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. La position de la coupure, donnée par  $I_p + 3.17U_p$ , correspond dans ce cas l'harmonique 63. Le gaz de détection dans le spectromètre de photoélectrons est l'hélium, et les mesures sont effectuées avec des potentiels retardateurs croissants par pas de  $10\omega_0 \approx 15.5$  V dans le tube de temps de vol. L'oscillation de chaque satellite est ainsi mesurée au moins deux fois, excepté pour les plus faibles. On regroupe ensuite les mesures par concaténation. Une baisse de l'énergie laser entre l'acquisition sans po-



**Fig. 4.7:** Mesure large bande des instants d'émission et des intensités des harmoniques dans le néon à  $3.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Les croix sont les valeurs mesurées (avec barres d'erreurs), et les disques les calculs théoriques pour les trajectoires courtes. Les droites continues sont des ajustements linéaires des instants d'émission.

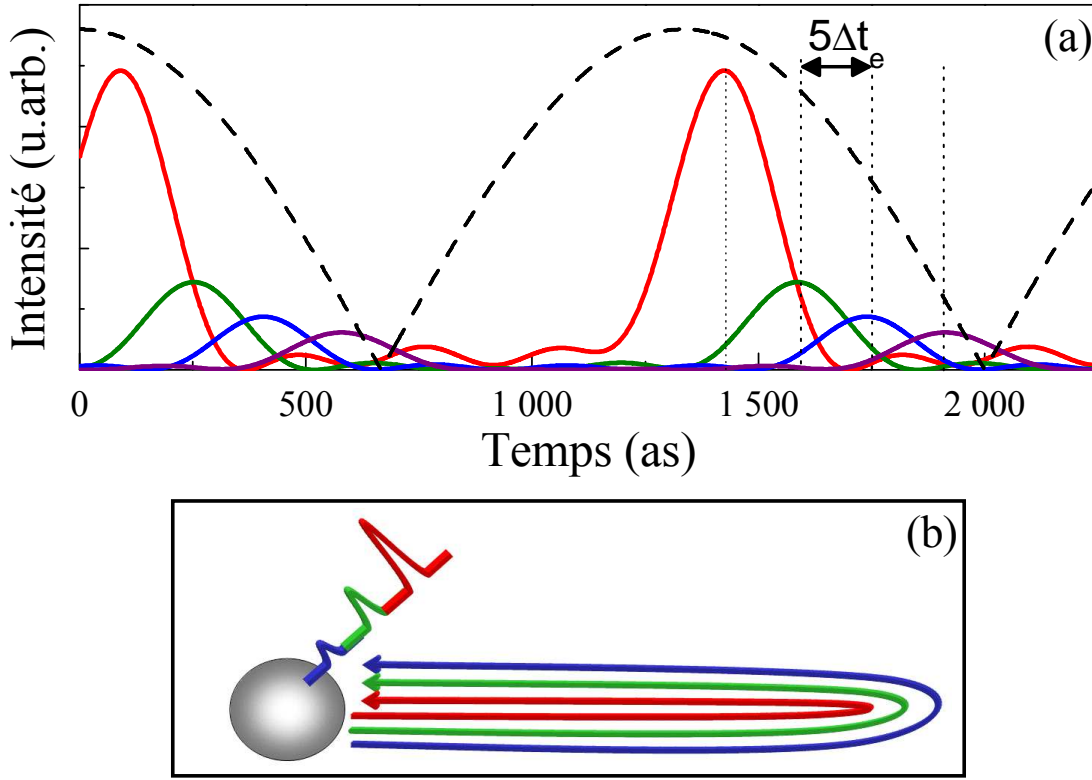
tentiel retardateur et la première mesure retardée, associée à des problèmes techniques sur le spectromètre, ont empêché la mesure d'harmoniques inférieures à 25 lors de cette série. Nous sommes tout de même parvenu à mesurer 23 harmoniques consécutives, de 25 à 69, la coupure étant observée autour de l'harmonique 61. La stabilité du laser pendant les plusieurs heures de mesures a été un paramètre déterminant de ce succès.

La figure 4.7 présente les intensités et instants d'émission des harmoniques en fonction de l'ordre dans le plateau. Le comportement est extrêmement régulier. L'ajustement linéaire permet de mesurer la désynchronisation des harmoniques  $\Delta t_e^{exp} = 33 \pm 3 \text{ as}$ . Les instants d'émission théoriques pour les trajectoires courtes évoluent également linéairement, avec une pente  $\Delta t_e^{th} = 26.1 \pm 0.2 \text{ as}$ . L'accord entre les pentes mesurée et calculée est correct. Concernant les valeurs des instants d'émission, un décalage d'une centaine d'attosecondes est présent entre les données expérimentales et théoriques. Cet effet peut être dû à une erreur expérimentale dans la mesure de la référence de phase, qui conditionne l'origine des temps.

### 4.3.2 Recombinaisons électroniques

Afin de visualiser la relation entre désynchronisation et dynamique du processus de génération, nous reconstruisons le train d'impulsions attosecondes par partie. Nous représentons en rouge sur la figure 4.8 le profil temporel obtenu en superposant les harmoniques 25 à 33, c'est à dire les 5 harmoniques consécutives les plus basses mesurées.

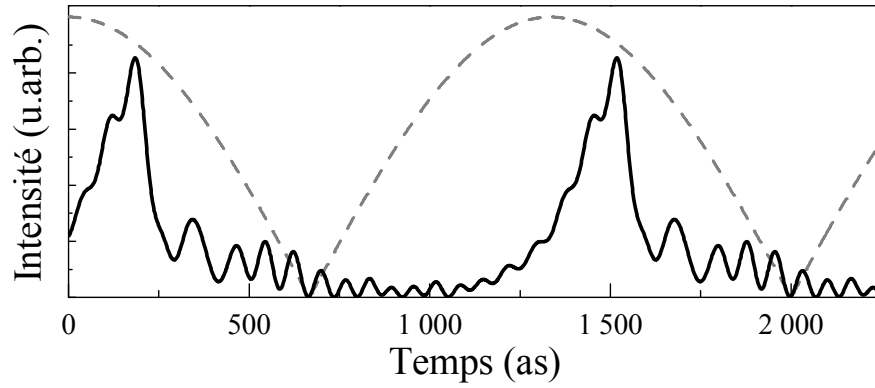




**Fig. 4.8:** (a) Trains attosecondes générés dans le néon à un éclairement de  $3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, correspondant aux harmoniques 25 à 33 (rouge), 35 à 43 (vert), 45 à 53 (bleu) et 55 à 63 (violet). La ligne pointillée représente la valeur absolue du champ infrarouge (b) Représentation schématique des trajets des paquets d'ondes électroniques correspondant.

Les impulsions attosecondes correspondantes ont une durée d'environ 255 as, ce qui est très proche de la limite de Fourier. Elles sont émises légèrement après le maximum d'amplitude du champ infrarouge générateur. La courbe verte présente la même reconstruction pour les 5 harmoniques suivantes, H35 à H43. L'amplitude du train attoseconde mesuré est plus faible, car même dans le plateau l'intensité des harmoniques décroît lorsque l'ordre augmente. Les impulsions ont également une durée de l'ordre de 250 as, mais elles sont émises plus tard. La reconstruction des trains d'impulsions attosecondes correspondant aux harmoniques suivantes confirme cette tendance (H45 à H53 en bleu, H55 à H63 en violet), les harmoniques les plus élevées (proches de la coupure) étant émises près du zéro du champ laser. Le décalage temporel entre les impulsions de deux groupes d'harmoniques successifs est constant. Il correspond à l'écart entre l'émission de deux harmoniques séparées de  $10\omega_0$  et vaut environ 150 as, soit approximativement  $5\Delta t_e$ .

Les trains d'impulsions attosecondes ainsi reconstruits permettent une visualisation des recombinaisons électroniques dans le processus de génération. On accède à des "photo-



**Fig. 4.9:** Train d’impulsions attosecondes correspondant aux harmoniques 25 à 69 générées dans le néon à  $3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. La ligne pointillée représente la valeur absolue du champ infrarouge.

graphies” des diverses composantes spectrales du paquet d’ondes qui s’est propagé dans le continuum lorsqu’il revient au voisinage de l’ion. En ce sens, cette mesure constitue une vérification directe du modèle en trois étapes de la génération d’harmoniques. La figure 4.8(b) donne une représentation schématisée du trajet des électrons menant à l’émission de trois impulsions attosecondes. Comme nous l’avons vu dans l’étude théorique, les instants d’ionisation correspondant aux différentes harmoniques sont très proches les uns des autres. Les électrons sont donc tous lancés dans le continuum dans un intervalle de temps très bref, mais en raison des petites différences de conditions initiales ils ont des trajectoires différentes. Les harmoniques les plus élevées (en bleu) sont émises par des électrons qui ont effectué un trajet plus long dans le continuum. Ils ont été accélérés plus longtemps par le champ laser et ont gagné une énergie cinétique supérieure. Les électrons émettant les harmoniques basses ont un parcours plus bref dans le continuum, et se recombinaient plus tôt. Cette interprétation est intuitive. Pour les trajectoires longues, la situation est inverse : les harmoniques les plus énergétiques sont émises par les électrons qui ont un trajet plus court.

Du fait de la désynchronisation, la superposition de toutes les harmoniques mesurées conduit à l’obtention d’un train d’impulsions de 150 as (au lieu de 50 as si elles étaient synchronisées), et présentant de fortes distorsions (figure 4.9). Cette mesure pourrait permettre de reconstruire le paquet d’ondes électronique tel qu’il était avant recombinaison en prenant en compte la section efficace de recombinaison radiative. Cet aspect est important car ces électrons peuvent être directement utilisés : en générant de tels paquets dans des molécules et en étudiant leur diffusion inélastique sur la molécule lors de leur retour, Niikura *et al.* ont pu effectuer des mesures de dynamiques moléculaires résolues en temps à une échelle sub-femtoseconde (Niikura *et al.*, 2002, 2003).

## 4.4 Optimisation de la génération d'impulsions attosecondes

L'existence d'une dérive de fréquence attoseconde limite la durée d'impulsions que l'on peut atteindre en superposant un groupe d'harmoniques. Il est donc naturel de chercher à la diminuer afin de générer des impulsions plus brèves. En comparant les mesures effectuées dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et dans le néon à  $3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, il apparaît que la synchronisation attoseconde des harmoniques est meilleure dans le dernier cas ( $\Delta t_e = 33$  as au lieu de 106 as). L'éclairement semble donc jouer un rôle important.

Pour accéder au comportement quantitatif de la dérive de fréquence en fonction de l'éclairement, nous évaluons la dérivée seconde de la phase spectrale au milieu du plateau, c'est à dire en  $\omega - I_p = 1.6U_p$ . Le calcul permet de montrer que :

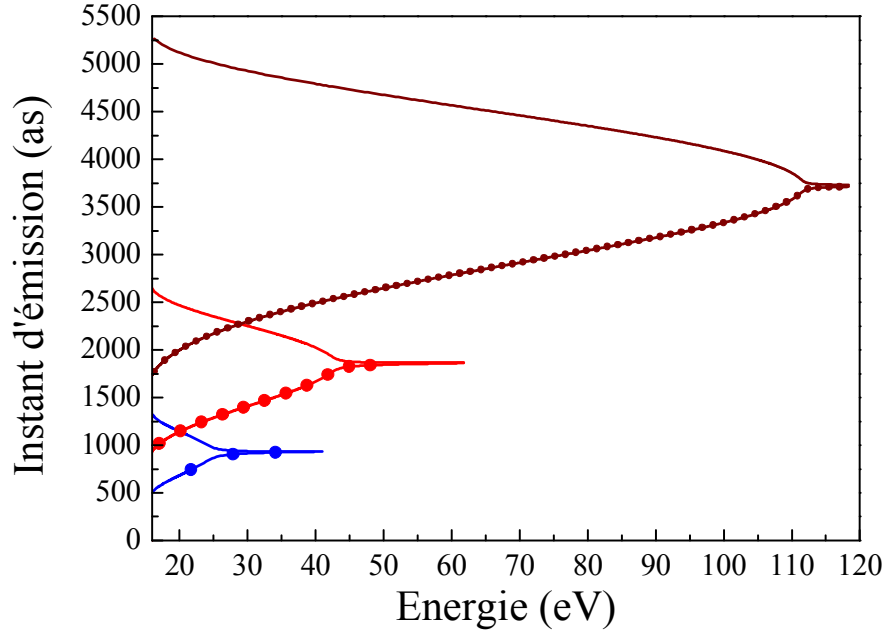
$$\Delta t_e \propto \frac{1}{U_p} = \frac{4\omega_0^2}{I_0} \quad (4.6)$$

$U_p$  étant le potentiel pondéromoteur. Pour diminuer la dérive de fréquence et améliorer la synchronisation des harmoniques, il est possible soit d'augmenter l'éclairement laser  $I_0$ , soit de diminuer la pulsation laser  $\omega_0$ .

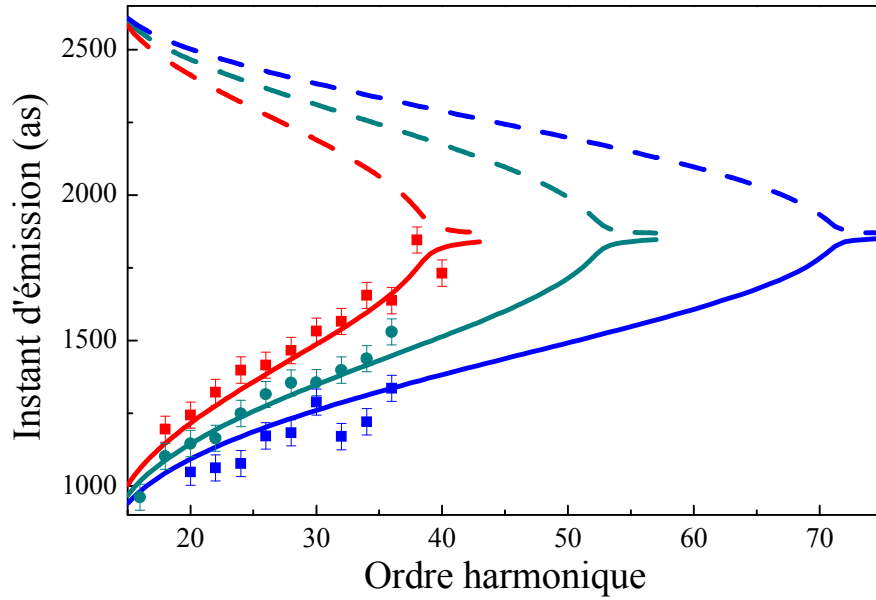
Considérons tout d'abord l'influence de la pulsation laser  $\omega_0$  sur les instants de recombinaison, illustrée par des simulations sur la figure 4.10. Lorsque la pulsation diminue, l'énergie de la coupure est considérablement augmentée (elle est proportionnelle à  $U_p$  donc à  $1/\omega_0^2$ ).  $\Delta t_e$  varie comme le carré de la pulsation, mais la distance entre deux harmoniques successives étant  $2\omega_0$ , la pente  $\Delta t_e/2\omega_0$  varie comme  $\omega_0$ . L'augmentation de la longueur d'onde est donc favorable à la synchronisation des harmoniques. De plus, la séparation entre deux impulsions attosecondes du train est alors également augmentée, ce qui pourrait rendre l'utilisation de tels trains plus aisée pour réaliser des expériences pompe-sonde attoseconde (Cf chapitre 6). La génération d'impulsions attosecondes avec des lasers de longueurs d'onde plus élevées dans l'infrarouge tels ceux développés par l'équipe de L. DiMauro (3000-5000 nm) serait donc particulièrement intéressante (Sheehy et al., 1999).

L'autre paramètre important pour la synchronisation est  $I_0$ . Nous représentons sur la figure 4.11 les temps d'émission calculés pour trois valeurs d'éclairement dans le néon. Lorsque l'éclairement augmente, la position de la coupure est repoussée vers des ordres élevés. L'émission harmonique a lieu sur la même gamme temporelle, entre 1000 et 1800 as pour les trajectoires courtes, et 2500 et 1800 as pour les trajectoires longues. L'augmentation du nombre d'harmoniques générées réduit donc la différence entre les instants d'émission de deux ordres consécutifs, c'est à dire la dérive de fréquence  $\Delta t_e$ . Cet effet est visible sur la figure dans la diminution de la pente de la tangente à la courbe au milieu du plateau.

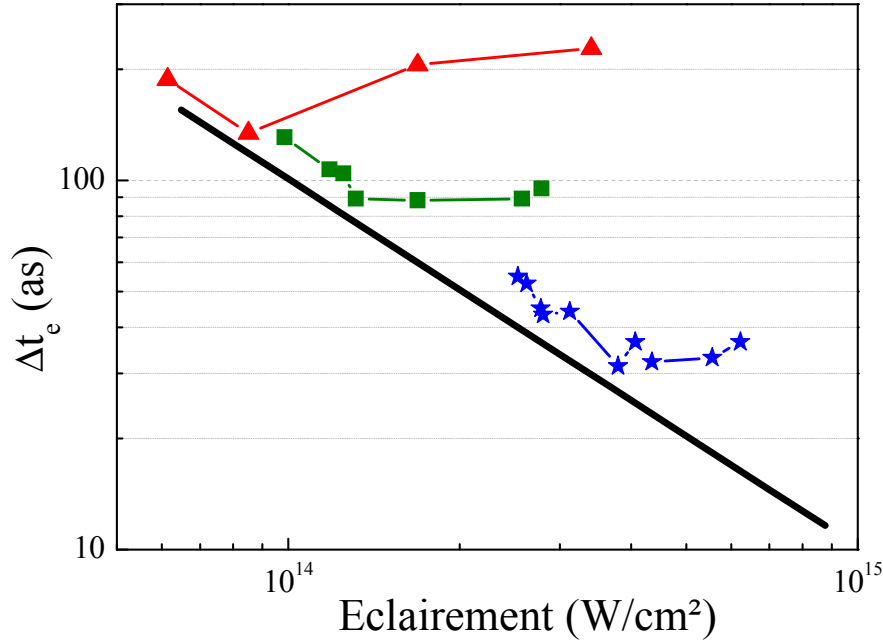
Nous avons donc effectué une étude expérimentale systématique de la synchronisation



**Fig. 4.10:** Instants d'émission calculés dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  avec un fondamental de longueur d'onde 400 nm (bleu), 800 nm (rouge), et 1600 nm (marron). Les points représentent la position des harmoniques.



**Fig. 4.11:** Instants d'émission des harmoniques calculés à  $I_0 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (rouge),  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (cyan) et  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (bleu) dans le néon. Les points sont les mesures RABBITT correspondantes.



**Fig. 4.12:** Dérive de fréquence attoseconde en fonction de l'éclairement laser. Valeurs théoriques (ligne noire continue) et mesures dans le xénon (triangles), l'argon (carrés) et le néon (étoiles).

des harmoniques en fonction de l'éclairement du laser. Nous avons utilisé le xénon, l'argon, le néon, et l'hélium comme gaz de génération, ce qui nous a permis de couvrir une large gamme d'éclairiments. Nous modifions l'éclairement laser en changeant l'ouverture du diaphragme placé avant la lentille de focalisation, ou en ajustant l'énergie par impulsion grâce à une lame demi-onde associée à un polariseur. Pour chaque condition de génération, nous effectuons une mesure RABBITT des harmoniques du plateau. Nous représentons sur la figure 4.11 les résultats obtenus dans le néon à trois éclairiments différents. Ils présentent un bon accord avec les simulations. Un ajustement linéaire des instants d'émission en fonction de l'ordre harmonique permet de déterminer la valeur de la dérive de fréquence attoseconde  $\Delta t_e$  correspondante. La figure 4.12 présente les résultats des mesures effectuées dans le xénon, l'argon et le néon. Nous discuterons le cas de l'hélium par la suite. Les valeurs théoriques constituent une droite en échelle logarithmique, caractéristique de la dépendance en  $1/I_0$ .

L'allure globale des points expérimentaux confirme l'amélioration de la synchronisation lorsque l'éclairement augmente. En observant les données en détail, nous remarquons que pour chaque gaz,  $\Delta t_e$  commence par décroître puis stagne ou augmente légèrement. Ce changement de régime a lieu autour de  $I_0 = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans le xénon,  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans l'argon, et  $7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans le néon. Il est possible de comparer ces éclairiments aux éclairiments de saturation  $I_{sat}$  des différents gaz, donnés par le

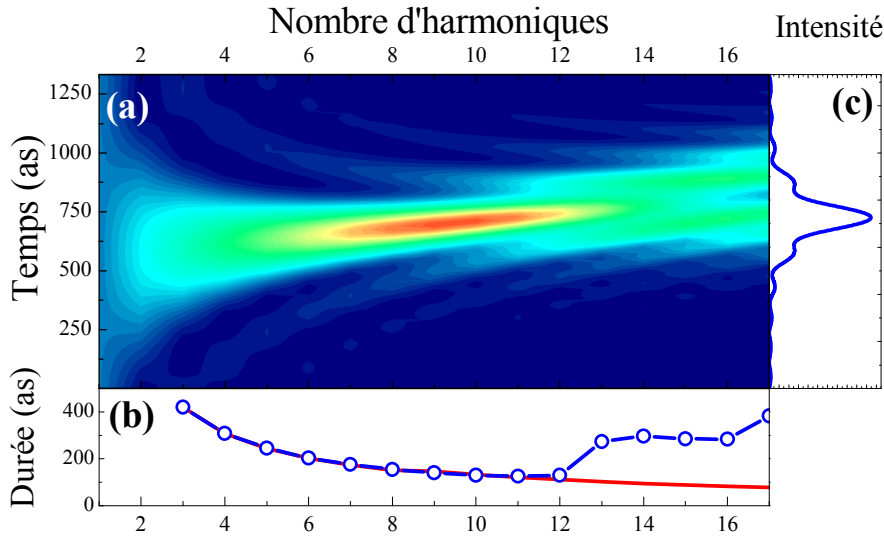
modèle de suppression de la barrière (BSI, voir chapitre 1) :  $I_{sat}^{Xe} = 9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $I_{sat}^{Ar} = 2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  et  $I_{sat}^{Ne} = 8.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Ces valeurs sont légèrement supérieures aux positions des changements de régime observés sur la courbe de la figure 4.12. Ainsi, la dégradation de la synchronisation des harmoniques correspond au cas où le milieu générateur est significativement ionisé. D'ailleurs, l'allure des instants d'émission mesurés dans ces cas est perturbée, et la linéarité avec l'ordre n'est plus qu'approximative. Nous pouvons en conclure que des effets de propagation modifient les phases relatives des harmoniques, et que la réponse de l'atome unique restreinte aux trajectoires courtes ne suffit pas à reproduire les données expérimentales dans ces conditions.

Les points expérimentaux mesurés dans le régime de faible ionisation présentent bien une décroissance linéaire en échelle logarithmique lorsque l'éclairement augmente. Nous vérifions ainsi que  $\Delta t_e \propto 1/I_0$ . Il existe un décalage systématique entre la courbe théorique et les mesures. Il pourrait être dû à des effets de propagation résiduels, mais aussi à des effets de moyenne spatiale et temporelle. Comme nous l'avons déjà noté, les calculs sont effectués à une seule valeur d'éclairement qui est l'éclairement crête. Les contributions des éclairements plus faibles dans le milieu peuvent augmenter la dérive de fréquence apparente.

L'optimum de synchronisation est obtenu dans cette étude en générant dans le néon à un éclairement de  $3.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Il s'agit du cas des mesures larges bandes qui ont été discutées précédemment dans ce chapitre. La situation vis à vis de la production d'impulsions attosecondes brèves est présentée sur la figure 4.13. Le nombre optimal d'harmoniques que l'on peut superposer est  $N_{opt} = 11$  et la durée alors obtenue est  $\tau_{opt} \approx 125 \text{ as}$ . Nous pouvons comparer cette situation à celle de la génération dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  : la dérive de fréquence a été réduite d'un facteur 3,  $\tau_{opt}$  d'environ  $\sqrt{3}$  tandis que  $N_{opt}$  a augmenté d'un facteur  $\sqrt{3}$ . Le profil temporel obtenu en superposant 11 harmoniques est représenté sur la figure 4.13(c). Le gain sur la largeur à mi hauteur des impulsions n'est pas énorme en comparaison au cas de la superposition de la totalité des harmoniques 25 à 69 (figure 4.9), mais le profil obtenu est bien plus régulier.

Nous avons tenté d'améliorer encore la synchronisation en générant dans l'hélium à des éclairements plus élevés. Malheureusement, nous avons utilisé une énergie laser trop importante et ionisé fortement le milieu générateur. Les relations de phases obtenues ne sont plus régulières et ne peuvent être simplement expliquées. Dans certains cas nous avons observé une bonne synchronisation des harmoniques sur une large bande spectrale, menant à des impulsions de durée inférieure à 100 as, mais la piètre reproductibilité des résultats et les difficultés d'interprétation ne nous permettent pas de réellement conclure sur ce cas.

En conclusion, pour optimiser la synchronisation dans la génération d'harmoniques,

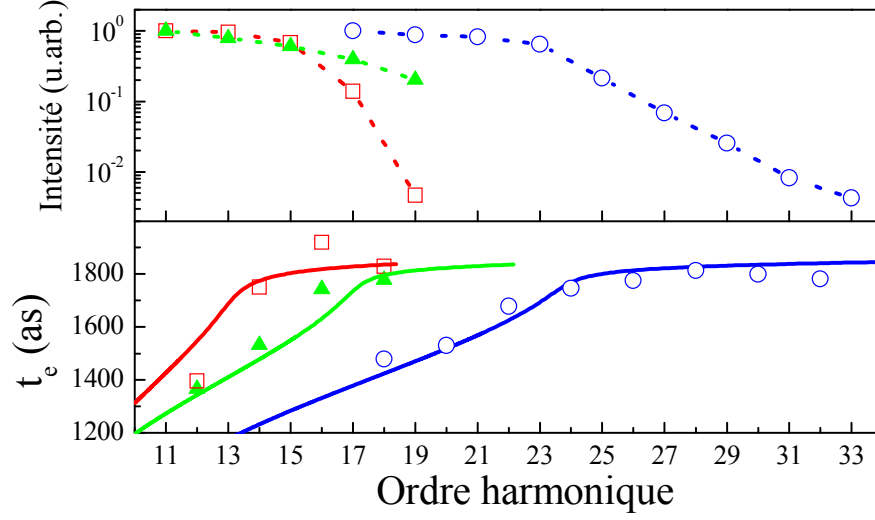


**Fig. 4.13:** (a) Profils temporels normalisés, reconstruits en superposant  $N$  harmoniques de même amplitude et avec une dérive de fréquence attoseconde  $\Delta t_e = 33$  as. (b) Cercles : durée à mi-hauteur de l'impulsion attoseconde en fonction de  $N$ . La ligne continue présente la limite de Fourier. (c) Profil temporel optimal correspondant à  $N=11$  harmoniques.

il faudrait générer dans l'hélium, à fort éclairage, mais tout en restant en deçà de l'éclairement de saturation du gaz pour éviter les distorsions dues à l'ionisation. Cette démarche permet de minimiser la dérive de fréquence attoseconde, améliorant la synchronisation des harmoniques, et devrait mener à l'obtention d'impulsions de durée inférieure à 100 as. Elle ne permet toutefois pas de l'annuler, et une sélection spectrale d'un certain nombre d'harmoniques  $N_{opt}$  est donc expérimentalement nécessaire. Nous verrons plus tard comment la réaliser.

## 4.5 Synchronisation dans la coupure

Les courbes théoriques décrivant l'instant d'émission harmonique en fonction de l'ordre montrent que dans la coupure, les deux familles de trajectoires électroniques se confondent et les harmoniques sont toutes synchronisées. Nous avons tenté de mettre ce dernier effet en évidence expérimentalement (Mairesse et al., 2004). Les mesures sont difficiles à réaliser dans cette région du spectre car les amplitudes harmoniques chutent très rapidement avec l'ordre. Nous sommes parvenus à observer un effet clair dans le xénon et l'argon (figure 4.14). La position de la coupure est très marquée sur le spectre du rayonnement (figure 4.14(a)). En échelle logarithmique, il y a une faible décroissance de l'intensité dans le plateau, puis à un certain ordre la décroissance devient brutale. Les courbes d'instant d'émission révèlent un net changement de comportement dans cette zone (figure 4.14(b)) : dans le plateau,  $t_e$  augmente linéairement avec  $q$ , ce qui est

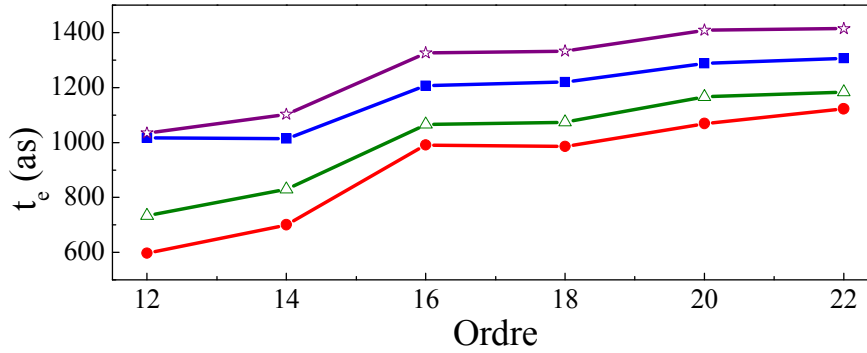


**Fig. 4.14:** Intensités (a) et instants d'émission (b) des harmoniques générées dans le xénon (et détectées dans l'argon) à  $3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (carrés) et  $6 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (triangles), et générées dans l'argon (détectées dans l'hélium) à  $9 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (cercles). Les lignes continues sur la figure (b) sont les instants d'émission donnés par les simulations atome unique pour les trajectoires courtes.

caractéristique de la dérive de fréquence linéaire, avec une pente d'autant plus élevée que l'éclairement est faible. Dans la coupure, l'instant d'émission devient constant : les harmoniques sont parfaitement bloquées en phase. Les valeurs calculées à partir de la réponse de l'atome unique sur les trajectoires courtes sont en bon accord avec les mesures. Les harmoniques de la coupure sont émises  $200 \pm 50$  as avant le zéro du champ laser (qui survient à  $t = 2000$  as).

Ces résultats sont importants en particulier dans le cadre de la génération d'impulsions attosecondes uniques par les lasers monocycles. Lorsque l'impulsion laser de génération a une durée de l'ordre de 5 fs, l'amplitude du champ électrique varie de manière significative d'un demi-cycle optique au suivant (Brabec and Krausz, 2000). Les harmoniques les plus élevées ne sont émises que quand cette amplitude est maximale, et leur génération peut ainsi être confinée temporellement à l'intérieur d'un demi-cycle optique. Spectralement, on observe alors une zone continue à la fin du plateau (Baltuska et al., 2003). L'équipe de F. Krausz à Vienne a effectué une sélection de cette zone par filtrage spectral pour obtenir une impulsion attoseconde unique (Hentschel et al., 2001; Kienberger et al., 2004). Cette dernière correspond à la coupure du spectre d'harmonique. Les observations que nous avons effectuées restent valables pour une impulsion attoseconde unique associée à un spectre continu (en négligeant les effets non-adiabatiques). L'impulsion est donc limitée par transformée de Fourier, et est émise un peu avant le zéro du champ infrarouge. Nos mesures sont en accord avec celles effectuées à Vienne avec la caméra à balayage de fente attoseconde (Kienberger et al., 2004), et fournissent





**Fig. 4.15:** Instants d'émission des harmoniques générées dans le néon (et détectées dans l'argon) à  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (disques) et  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (triangles),  $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (carrés) et  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (étoiles).

un complément d'information. En effet, la méthode d'analyse des résultats obtenus avec la caméra à balayage de fente ne permettrait que de déterminer les phases d'ordre 2 et éventuellement 3. L'équipe de F. Krausz conclue ainsi que la phase spectrale est absolument linéaire, ce qui ne peut être qu'approximatif : les instants d'émission que nous mesurons ne sont pas rigoureusement constants mais présentent de faibles fluctuations, qui vont induire des non-linéarités sur la phase de l'impulsion attoseconde. Nous présenterons au chapitre 5 une méthode d'analyse (FROGCRAB) qui permet d'améliorer le traitement de telles mesures et d'obtenir la phase spectrale à tout ordre.

## 4.6 Synchronisation des harmoniques faibles

Les harmoniques de la coupure sont avantageuses pour générer des impulsions attosecondes car elles sont synchronisées. Néanmoins, elles ont une intensité faible, ce qui rend leur utilisation difficile dans des expériences d'applications. Les harmoniques les plus basses, au début du plateau, permettent d'atteindre des éclaircements UVX beaucoup plus importants, puisque leur énergie peut atteindre le microjoule (Hergott et al., 2002). Elle pourraient donc être intéressantes notamment dans le cadre de l'étude d'effets non linéaires dans le régime attoseconde. Nous avons donc entrepris de mesurer leur synchronisation (Mairesse et al., 2004).

Les mesures des ordres faibles ont été effectuées en générant les harmoniques dans le néon et en détectant dans l'argon. Le potentiel d'ionisation de l'argon ( $I_{p_{Ar}} = 15.8 \text{ eV} = 10.2\hbar\omega_0$ ) est inférieur à celui du néon ( $I_{p_{Ne}} = 21.6 \text{ eV} = 13.9\hbar\omega_0$ ). Cela permet de mesurer des harmoniques d'énergie inférieure au potentiel d'ionisation du gaz de génération. Nous représentons sur la figure 4.15 les instants d'émission mesurés pour différents éclaircements laser, en fonction de l'ordre harmonique. Le comportement est bien moins

régulier que dans le plateau. Il apparaît systématiquement un saut autour de l'harmonique 15. L'amplitude de ce saut décroît lorsque l'éclairement laser augmente, d'environ 300 as à  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> à moins de 200 as à  $3.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les dérives de fréquence attosecondes dans le plateau données par les simulations pour ces éclairements sont respectivement  $\Delta t_e = 50$  as et 29 as (figure 4.12). En fait la courbe théorique de l'instant d'émission en fonction de l'ordre n'est pas linéaire en début de plateau et prévoit donc une augmentation progressive de la désynchronisation des ordres faibles (figure 4.11). Cependant le décalage mis en évidence ici est bien plus important et brutal. Notons que les calculs concernant les ordres harmoniques faibles sont en limite de validité de la théorie développée en champ fort. De plus, les temps d'émission correspondant aux satellites d'ordres 12 et 14 font intervenir des harmoniques dont l'énergie est inférieure au potentiel d'ionisation, ce qui est incompatible avec le modèle semi-classique. Cette mesure montre donc une limite de l'analyse théorique qui a été menée parallèlement à l'expérience. Il est possible que le saut observé sur la figure 4.15 soit dû au fait que le processus de génération est dans cette zone principalement multi-photonique, et donc très sensible à des effets de résonance.

Ces observations indiquent donc que les harmoniques basses ne constituent pas de bons candidats pour la génération d'impulsions attosecondes très brèves. Cependant, elles peuvent permettre d'obtenir des trains intenses d'impulsions de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes avec des énergies de l'ordre du microjoule, ce qui peut s'avérer largement suffisant pour certaines applications. Récemment, un train d'impulsions résultant de la superposition des harmoniques 7 à 13 générées dans le xénon a été mesuré par autocorrélation non-linéaire (Tzallas *et al.*, 2003). La durée d'impulsion obtenue, environ 800 as, est bien supérieure à la limite de Fourier. L'origine de cet écart n'a pas pu être déterminé par Tzallas *et al.* car l'autocorrélation ne donne pas accès à la phase spectrale de l'impulsion. Il est possible que la mauvaise synchronisation des harmoniques faibles que nous avons mesurée soit l'une des causes de l'élargissement temporel observé.

## 4.7 Génération d'impulsions attosecondes en polarisation elliptique

### 4.7.1 Mesures de la synchronisation

La structure temporelle de l'émission attoseconde est déterminée par la dynamique des électrons dans le continuum, sous l'effet du champ laser. Des changements des propriétés de ce champ devraient donc induire des modifications des impulsions attosecondes. Nous avons ainsi vu que la fréquence et l'amplitude du champ étaient des paramètres déterminants pour la synchronisation des harmoniques. Nous étudions à présent l'effet

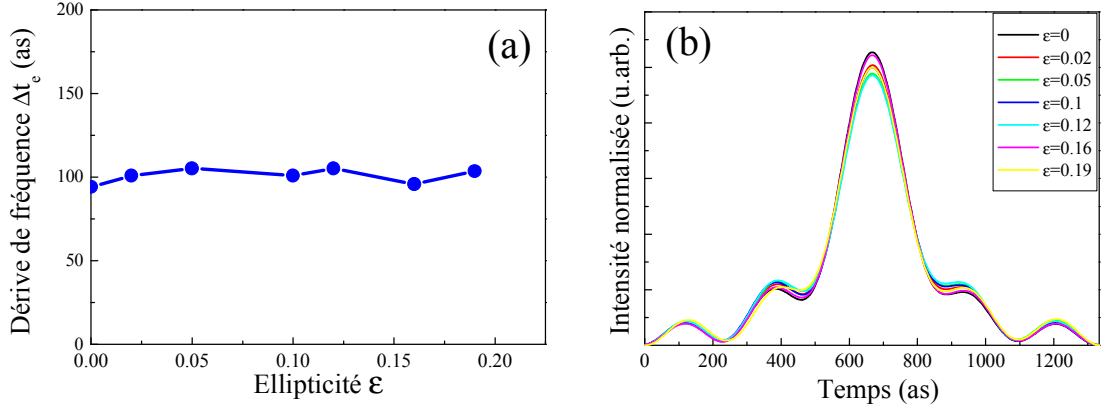
de l'état de polarisation du champ.

L'ellipticité du fondamental est un facteur critique dans le processus de génération d'harmoniques. En effet, lorsque la polarisation est elliptique, les trajectoires électroniques dans le continuum ne sont plus linéaires, et l'électron ne revient pas en général au voisinage de l'atome en raison de la vitesse transverse qui lui a été communiquée par le champ. La probabilité de recombinaison radiative est alors très réduite et l'efficacité de la génération d'harmoniques chute brutalement. Quantitativement, l'intensité harmonique peut s'écrire  $I \propto e^{-\beta\epsilon^2}$ , où  $\epsilon$  est l'ellipticité du fondamental et  $\beta$  un paramètre dépendant de l'ordre harmonique, et qui vaut typiquement 30 dans le plateau (Budin et al., 1993). Cette forte dépendance peut être utilisée pour confiner temporellement l'émission harmonique en générant avec un champ laser dont l'ellipticité varie dans le temps (Corkum et al., 1994; Constant, 1997; Platonenko and Strelkov, 1999). Nous avons étudié cet effet grâce aux mesures de type SPIDER présentées au chapitre 2. Ce procédé devrait permettre de générer des impulsions attosecondes uniques dans le plateau (Chang, 2004; Strelkov et al., 2004; Chang, 2005).

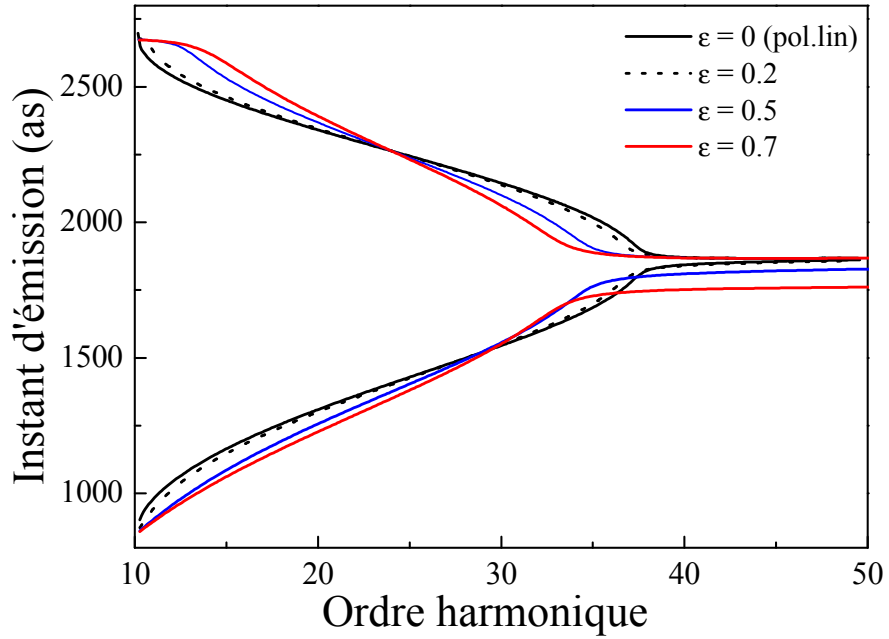
Afin d'étudier la génération d'impulsions attosecondes en polarisation elliptique, nous avons placé une lame quart-d'onde sur le bras de génération de la ligne à retard. Le réglage de l'orientation  $\theta$  de l'axe de cette lame par rapport à la direction de polarisation du laser incident permet d'imposer une ellipticité  $\epsilon = \tan(\theta)$ . Le signal diminue rapidement quand  $\epsilon$  augmente et nous n'avons pu effectuer de mesures RABBITT que pour des ellipticités inférieures à 0.2. Les harmoniques sont générées dans l'argon, à un éclairage de  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Pour chaque position de la lame quart d'onde, nous mesurons les phases relatives des harmoniques et déduisons la valeur de la dérive de fréquence attoseconde  $\Delta t_e$  d'une régression linéaire des instants d'émission. Les mesures présentées sur la figure 4.16 correspondent aux harmoniques 13 à 23. La dérive de fréquence varie de quelques attosecondes (une statistique donne une valeur moyenne de  $\Delta t_e = 100 \pm 5$  as), mais il s'agit de fluctuations plus que d'une tendance systématique comme celle observée sur la figure 4.12. Les profils temporels reconstruits présentés sur la figure 4.16(b) confirment cette conclusion : une ellipticité inférieure à 0.2 n'affecte pas de manière significative la synchronisation des harmoniques.

#### 4.7.2 Etude théorique

Une étude théorique de la génération d'impulsions attosecondes par un champ elliptique a été menée à Saclay par Thierry Auguste parallèlement à ces expériences. Les calculs sont effectués dans le cadre de l'approximation du champ fort, à partir des équations de point selle 1.18 à 1.20. Les trajectoires (complexes) obtenues font apparaître que lors de l'ionisation en champ elliptique, l'électron peut partir avec une vitesse initiale non nulle, ce qui lui permet de revenir sur le noyau, menant à l'émission d'harmoniques. La



**Fig. 4.16:** (a) Dérives de fréquence attosecondes mesurées dans l'argon à  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  en fonction de l'ellipticité du laser. (b) Profils temporels correspondants pour une impulsion attoseconde du train .



**Fig. 4.17:** Instants d'émission calculés dans l'argon à  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  en fonction de l'ellipticité du laser.

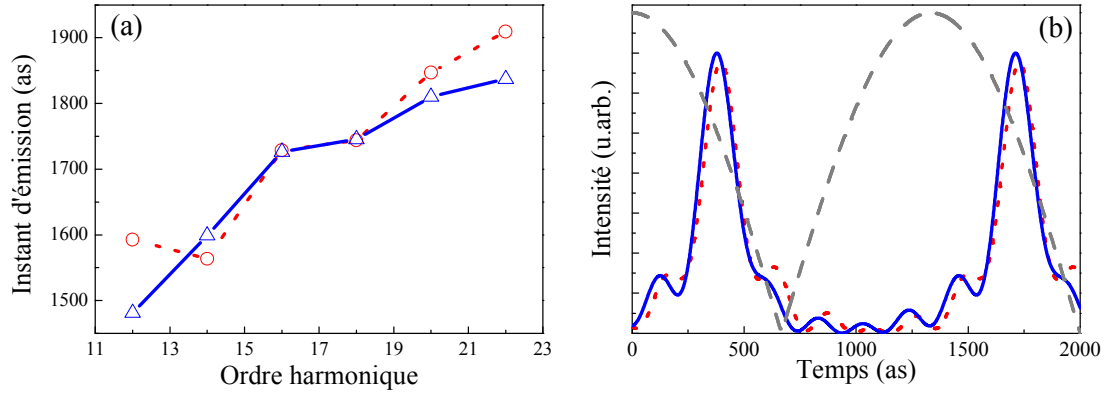
figure 4.17 présente les instants d'émission calculés dans l'argon pour diverses ellipticités variant de 0 à 0.7. On observe une augmentation progressive de la dérive de fréquence attoseconde  $\Delta t_e$  quand  $\epsilon$  croît. Cependant, dans la gamme d'ellipticités accessibles expérimentalement compte tenu de la décroissance du signal harmonique, l'effet est minime. La modification de  $\epsilon$  entraîne également un changement de la position de la coupure (Milosevic, 2000). On peut noter qu'aux fortes ellipticités, les trajectoires courtes et longues ne se rejoignent plus dans la coupure, mais sont décalées.

L'étude théorique de la synchronisation des harmoniques confirme donc les observations expérimentales : la structure attoseconde n'est pas affectée par une faible ellipticité. Cette conclusion est importante dans le cadre du confinement temporel de l'émission harmonique : le seul effet de l'ellipticité est de réduire l'efficacité de l'émission. On peut réellement considérer qu'une impulsion laser dont la polarisation n'est linéaire que pendant un intervalle très bref agit comme une porte temporelle sur la génération d'impulsions attosecondes. Les calculs des instants d'émission harmonique en présence d'une porte de polarisation récemment publiés dans (Chang, 2005) confirment ces observations.

## 4.8 Synchronisation des harmoniques générées dans les molécules

L'intérêt de la mesure des phases relatives ne réside pas seulement dans la caractérisation des impulsions attosecondes en vue de leur utilisation dans des expériences d'application. Il s'agit également d'une caractérisation du mécanisme de génération, et donc du comportement d'un atome en champ fort. A ce titre, mener une étude similaire dans les molécules est intéressant. De plus, les travaux récemment effectués par Itatani et al. (2004) ont montré que les spectres des harmoniques générées dans des molécules alignées permettaient de déterminer la fonction d'onde de l'orbitale moléculaire la plus haute occupée. Cette technique repose sur le principe de la tomographie, et nécessite la mesure des amplitudes et des phases harmoniques. Dans leur publication, Itatani et al. (2004) n'ont mesuré que les amplitudes et ont utilisé des prévisions théoriques pour les phases. Nous exposons dans le paragraphe suivant les principaux résultats des simulations des phases des harmoniques générées dans les molécules.

Nous considérons le cas de la génération d'harmoniques dans des molécules diatomiques préalablement alignées. Le processus de génération est analogue à celui que nous avons décrit dans les atomes. Une partie du paquet d'ondes électronique passe d'abord par effet tunnel du fondamental au continuum. Ce paquet d'ondes est alors accéléré, et s'étale spatialement du fait de la diffusion quantique. Ainsi, lorsqu'il revient au voisinage de la molécule il a une extension transversale suffisante pour pouvoir se recombiner sur



**Fig. 4.18:** (a) Instants d'émission et (b) profils temporels correspondants des harmoniques générées dans l'azote (triangles-ligne) et l'argon (cercles-pointillés) à  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les tirets sur la figure (b) représentent la valeur absolue du champ laser.

chacun des noyaux. Cependant, selon l'orientation de la molécule le paquet d'ondes ne se recombine pas simultanément sur les deux noyaux. L'émission lumineuse est donc le fruit d'une interférence de deux contributions, qui est déterminée par la différence de phase du paquet d'ondes électronique entre les deux noyaux. L'interférence est destructive lorsque la projection de la distance internucléaire sur la direction de polarisation du laser est égale à la moitié de la longueur d'onde de de Broglie des électrons (Lein et al., 2002, 2003). Il apparaît donc un minimum sur le spectre harmonique. Les simulations montrent que la phase harmonique effectue un saut d'environ  $\pi$  autour de ce minimum.

Ces prédictions ne concernent que les molécules alignées. Nous avons dans un premier temps effectué des mesures de phases harmoniques dans des molécules non-orientées. On peut tout de même s'attendre à observer une signature des effets de phase. Puisque le saut de phase a lieu à divers ordres harmoniques selon l'orientation, la phase du signal total pourrait se révéler perturbée pour des ordres supérieurs à la longueur d'onde de de Broglie correspondant au double de la distance internucléaire. Nous avons étudié la synchronisation des harmoniques générées successivement dans l'azote et dans l'argon, avec exactement les mêmes conditions de génération (en particulier le même éclairage laser, ce qui est critique comme nous l'avons vu). Ces deux gaz ont été choisis pour la comparaison en raison de la quasi-égalité de leurs potentiels d'ionisation. Les molécules avaient une orientation aléatoire. La figure 4.18 présente une comparaison des instants d'émission et des profils temporels attosecondes des harmoniques 11 à 23, générées dans l'azote et l'argon. Les impulsions attosecondes reconstruites sont remarquablement proches, tant au niveau de la durée de l'émission que de la synchronisation par rapport au fondamental (figure 4.18(b)). Le détail des instants d'émission révèle tout de même des différences : l'émission de l'harmonique 11 est très décalée, et la dérive de fréquence semble diminuer dans le cas de l'azote pour les ordres les plus élevés. Ces mesures ont

été reproduites, et les tendances observées sont systématiques. Le champ laser et le potentiel d'ionisation étant les mêmes dans les deux cas, ces différences sont dues à la structure moléculaire. Une analyse théorique serait nécessaire pour en comprendre l'origine, et en extraire des informations sur la structure de l'azote.

Nous n'observons pas dans nos mesures de fortes perturbations de la phase qui pourraient être dues à un effet d'interférences dans le processus de génération. L'ordre harmonique correspondant à l'interférence destructive dans le mécanisme de génération est de 25 pour une molécule d'azote alignée selon la direction du laser. Il augmente lorsque la molécule s'écarte de cette direction. Il est donc possible que la diminution de la pente des instants d'émission que nous observons aux ordres 20 et 22 soit due à la proximité du saut de phase pour les molécules alignées suivant la direction de polarisation du laser. Cette étude devrait être prochainement étendue au cas de molécules alignées.

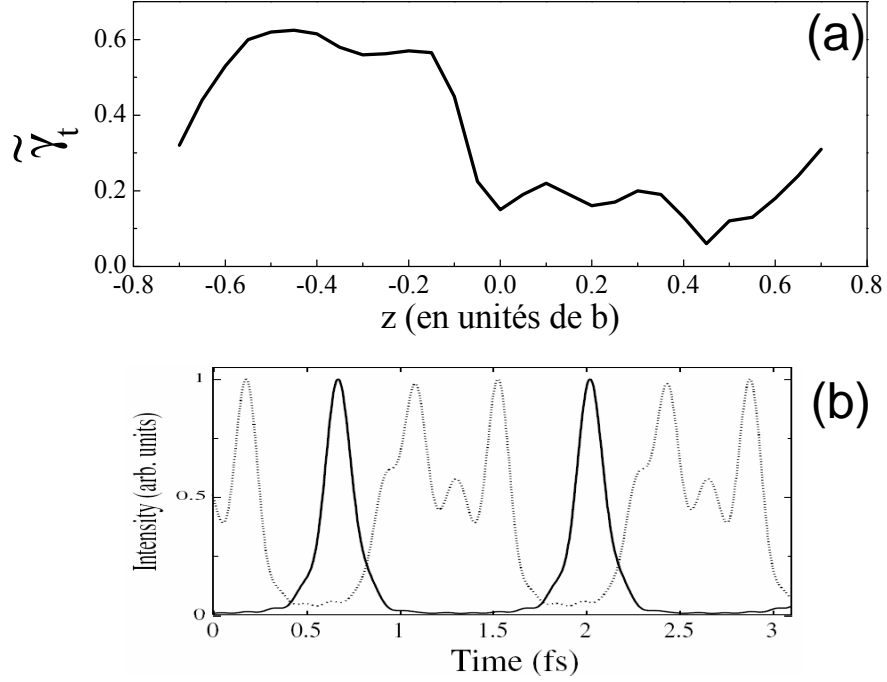
## 4.9 Robustesse de la sélection des trajectoires courtes

L'étude expérimentale de la synchronisation des harmoniques que nous avons menée jusqu'à présent concernait uniquement les trajectoires courtes. Leur sélection permet d'obtenir un train d'impulsions attosecondes ne comportant qu'une impulsion par demi-cycle optique, et l'optimisation de l'éclairement laser améliore la synchronisation des harmoniques. Il est ainsi possible d'obtenir des trains d'impulsions attosecondes brèves et régulières. La robustesse de la production de tels trains dépend fortement de la qualité de la sélection de trajectoire effectuée. Nous étudions ces aspects dans cette partie ([Mairesse et al., 2004](#)).

Les premières simulations de la production de trains d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques d'ordre élevé ont montré que le profil temporel de la réponse macroscopique du milieu était très sensible aux conditions de focalisation du laser ([Antoine et al., 1996b](#)). En particulier, lorsque le laser est focalisé dans le jet de gaz, on obtient un profil temporel irrégulier, caractéristique de l'existence de contributions de plusieurs familles de trajectoires électroniques au rayonnement. Il est essentiel d'étudier ces effets expérimentalement afin de mieux contrôler la génération de trains d'impulsions attosecondes.

### 4.9.1 Calculs TDSE

Une étude théorique récente, basée sur la résolution de l'Equation de Schrödinger Dépendant du Temps (TDSE) avec propagation, a précisé les conditions de sélection des contributions des trajectoires courtes dans la réponse macroscopique ([Gaarde and Schafer, 2002b](#)). Mette Gaarde introduit un paramètre pour quantifier l'écart à l'idéalité d'un



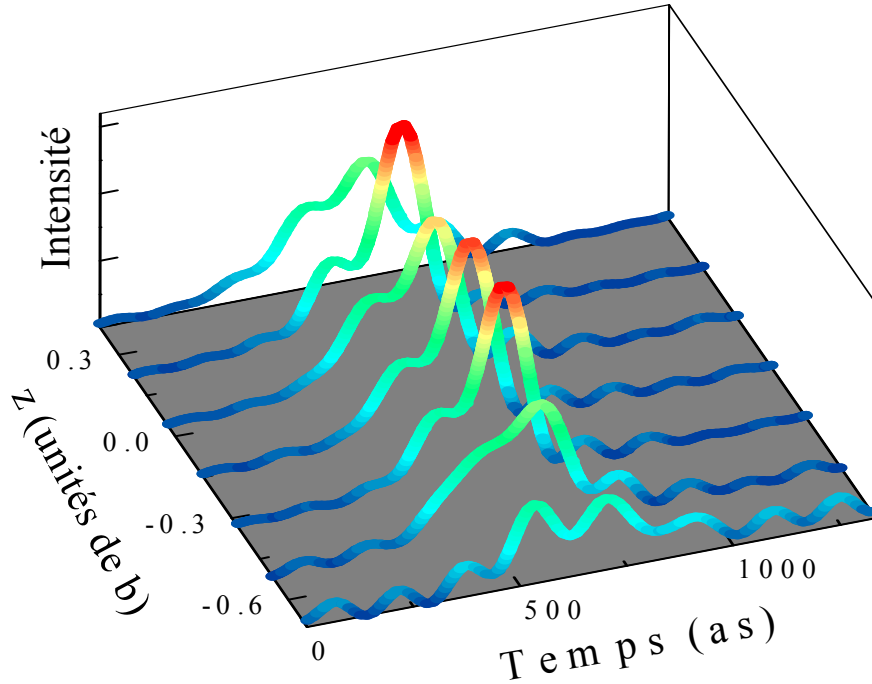
**Fig. 4.19:** (a) Calculs TDSE du blocage de phase en fonction de la focalisation pour les harmoniques 41 à 59 générées dans le néon à  $6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. (b) Profils temporels correspondants, pour une focalisation 0.45b avant le jet (ligne continue) et au centre du jet (pointillés). D'après [Gaarde and Schafer \(2002b\)](#)

train d'impulsions attosecondes. Le cas idéal correspond à la superposition de  $N$  harmoniques parfaitement en phase, c'est à dire à des impulsions limitées par transformée de Fourier de durée  $\tau_N = T_0/2N$ . Le paramètre introduit, dit "de blocage de phase", est le rapport entre l'énergie contenue dans un intervalle de durée  $\tau_N$  autour du maximum de l'impulsion, et l'énergie totale de l'impulsion dans le demi-cycle optique :

$$\gamma_t = \frac{\int_{\tau_N} dt I_{UVX}(t)}{\int_{T_0/2} dt I_{UVX}(t)}. \quad (4.7)$$

On peut le normaliser de la manière suivante :  $\tilde{\gamma}_t = (\gamma_t - 2\tau_N/T_0)/(\gamma_t^{TF} - 2\tau_N/T_0)$ , où  $\gamma_t^{TF}$  est la valeur obtenue pour des impulsions limitées par transformée de Fourier. Ainsi,  $\tilde{\gamma}_t$  vaut 1 si les harmoniques sont bloquées en phase, et tend vers 0 lorsque les phases sont aléatoires, c'est à dire lorsque l'émission est quasiment continue. L'étude de  $\tilde{\gamma}_t$  en fonction de la focalisation est présentée sur la figure 4.19, pour les harmoniques 41 à 59 générées dans le néon par une impulsion laser de 50 fs et d'éclairement crête au foyer  $6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.  $z$  est la position relative du foyer du faisceau laser et du centre du jet de gaz, et est positif pour une focalisation après le jet. Le blocage de phase est bon lorsque le laser est focalisé avant le jet, entre  $z = -0.6b$  et  $z = -0.1b$ ,  $b$  étant le paramètre confocal. Quand le foyer atteint le jet ( $z = 0$ ), on observe une



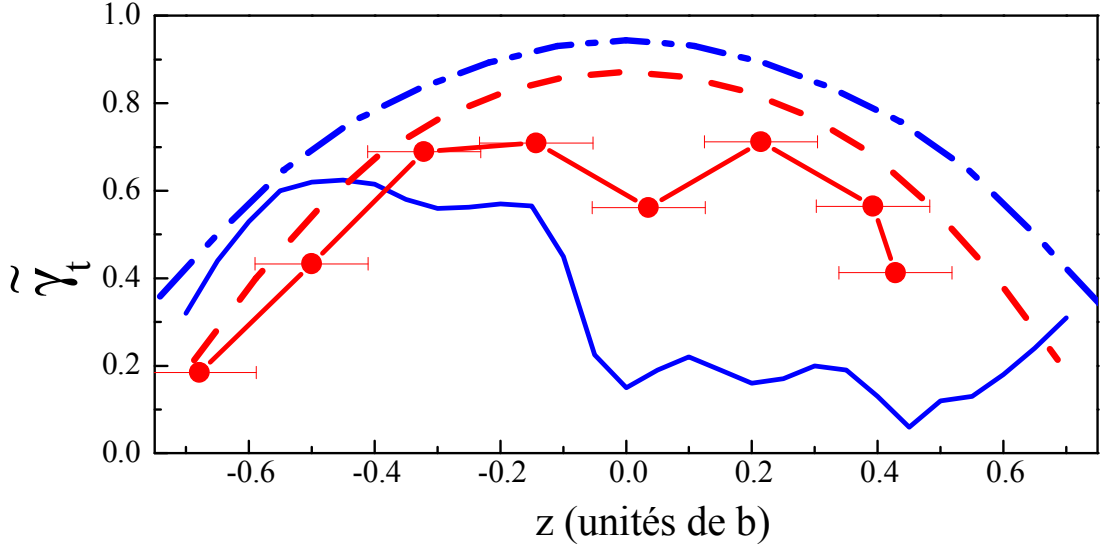


**Fig. 4.20:** Profils temporels normalisés d'une impulsion attoseconde du train résultant de la superposition des harmoniques 17 à 35 générées dans le néon, en fonction de la focalisation.

brusque décroissance de  $\tilde{\gamma}_t$ . On peut déterminer l'origine de cet effet à partir des profils temporels correspondants (figure 4.19(b)). Lorsque  $z = 0$ , le profil temporel attoseconde est très distordu, avec deux impulsions principales par demi-cycle optique, séparées de 500 as environ : les contributions des deux familles de trajectoires sont alors présentes, ce qui fait chuter  $\tilde{\gamma}_t$ . Le blocage de phase est médiocre pour toute focalisation du laser après le jet. La conclusion de cette étude est donc qu'une famille de trajectoires (les trajectoires courtes) est efficacement sélectionnée macroscopiquement par l'accord de phase lorsque le laser est focalisé avant le jet de gaz, mais que cet effet disparaît dès lors que le foyer se rapproche ou dépasse le jet.

#### 4.9.2 Mesures du blocage de phase

Afin d'étudier l'efficacité de la sélection de trajectoire par l'accord de phase, nous avons effectué des mesures de phases relatives des harmoniques en fonction de la focalisation. Nous focalisons le laser dans un jet de néon avec un éclairement d'environ  $4.7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> au foyer et un paramètre confocal de  $b = 23$  mm. Nous translatons la lentille de focalisation, et effectuons une mesure RABBITT pour chaque position. Le gaz de détection utilisé dans le spectromètre est l'hélium. Le train d'impulsions attosecondes est reconstruit à partir des amplitudes et des phases spectrales mesurées. Nous sélection-



**Fig. 4.21:** Paramètre de blocage de phase normalisé en fonction de la focalisation : mesures (disques), calculs TDSE de Gaarde (ligne), et calculs atome unique correspondant pour la trajectoire courte (tirets).

nous un groupe de 10 harmoniques (17 à 35) qui sont communes à toutes les mesures. Nous représentons sur la figure 4.20 l'intensité du champ attoseconde en fonction du temps et de la focalisation. L'axe des temps s'étend sur une demi-période laser. L'aire de chaque profil temporel est normalisée. Par conséquent, plus l'impulsion est courte, plus sa valeur maximale est élevée. Le maximum de chaque impulsion est ramené au centre de la fenêtre temporelle afin de faciliter la visualisation. Nous n'étudions donc ici que les effets de distorsion du profil temporel, et non des variations de l'instant moyen d'émission de l'impulsion attoseconde. L'effet de la focalisation sur l'allure des impulsions est très important. Lorsque le foyer du laser est loin du jet, le profil temporel est très distordu, tandis qu'il est plus régulier quand le foyer est proche du jet. Les impulsions les plus brèves sont obtenues pour une focalisation très proche du jet, entre  $-0.3b$  et  $0.3b$ , même si on note une légère dégradation lorsque le laser est focalisé exactement dans le milieu.

Le calcul du paramètre de blocage de phase  $\gamma_t^{\tilde{exp}}$  pour ces différentes impulsions permet de quantifier ces observations (figure 4.21). Il peut être comparé aux résultats obtenus dans (Gaarde and Schafer, 2002b) et discutés précédemment, même si les conditions de génération ne sont pas exactement les mêmes. En effet, les auteurs précisent dans leur article que l'allure de la dépendance en  $z$  de  $\tilde{\gamma}_t$  varie peu lorsqu'ils modifient l'éclairement du laser ou la fréquence centrale du groupe de 10 harmoniques qu'ils sélectionnent dans le plateau. Les comportements théoriques et expérimentaux de  $\tilde{\gamma}_t$  pour  $z < 0$  sont similaires : lorsque le foyer est trop loin du jet, le blocage de phase est mauvais ; il s'améliore quand le foyer se rapproche, et sature. La différence entre les valeurs maximales

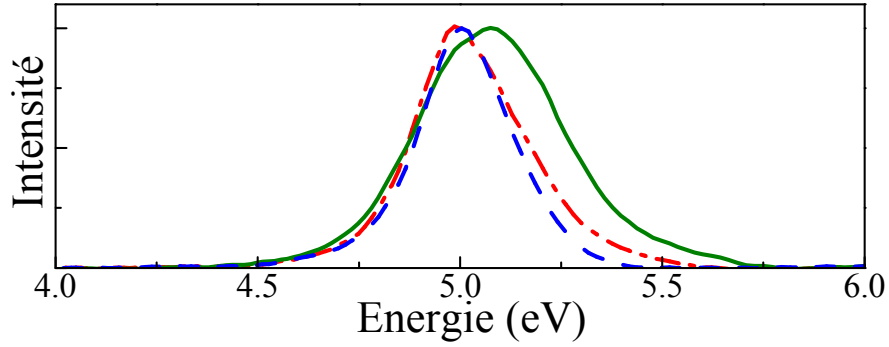
théorique et expérimentale de  $\tilde{\gamma}_t$  est due à une convention différente dans la définition du paramètre : les auteurs de (Gaarde and Schafer, 2002b) le définissent pour 10 harmoniques de même amplitude ; de notre côté, nous calculons cette valeur en prenant en compte les amplitudes relatives des harmoniques. En adoptant la même convention que dans (Gaarde and Schafer, 2002b), nous obtenons une valeur de  $\tilde{\gamma}_t$  à saturation de 0.6, ce qui est en excellent accord avec le résultat obtenu dans les simulations TDSE.

En revanche, la différence entre les mesures et les prévisions théoriques lorsque le laser est focalisé dans ou après le jet est frappante. On n’observe pas expérimentalement la brusque dégradation du blocage de phase liée à l’apparition des contributions des trajectoires longues au rayonnement. D’ailleurs, les profils temporels mesurés et représentés sur la figure 4.20 comportent une seule impulsion par demi-cycle optique. Ces observations indiquent l’absence de contribution des trajectoires longues dans le signal détecté, même lorsque le laser est focalisé dans ou après le jet de gaz.

### 4.9.3 Sélection de la trajectoire courte en champ lointain

Les deux familles de trajectoires électroniques, longues et courtes, ont des propriétés différentes du point de vue de l’accord de phase, ce qui permet d’en sélectionner une macroscopiquement en focalisant le laser avant le jet. Elles diffèrent également sur d’autres points, comme la largeur spectrale et la divergence de l’émission.

Nous avons vu au chapitre 2 que la dépendance linéaire de la phase harmonique avec l’éclairement, associée à la variation temporelle d’éclairement dans l’impulsion laser, induit une dérive de fréquence de l’émission, et donc un élargissement spectral. Ce dernier est d’autant plus important que la trajectoire est longue (ce qui correspond à une valeur élevée du paramètre  $\alpha_q$ ). De la même façon, la distribution radiale d’éclairement dans le jet conduit à une courbure du front d’onde harmonique, et donc à une divergence différente suivant la trajectoire considérée. L’émission provenant des trajectoires courtes s’effectue principalement sur l’axe du laser, tandis que les contributions des trajectoires longues sont plus divergentes (Salieres et al., 1995; Gaarde et al., 1999). Cette propriété a été démontrée expérimentalement par des mesures de cohérence temporelle des différentes parties du faisceau harmonique en champ lointain : la partie centrale a une grande longueur de cohérence, ce qui correspond aux trajectoires courtes, tandis que la zone externe a une plus faible cohérence (Bellini et al., 1998; Lynga et al., 1999). L’analyse détaillée des profils spectraux des harmoniques a montré que la partie la plus divergente du faisceau était spectralement plus large, et qu’il était possible de l’éliminer en plaçant un diaphragme en champ lointain pour filtrer spatialement le rayonnement (Merdji et al., 2005). Une telle sélection de la partie la moins divergente du rayonnement, à laquelle est associée un spectre étroit, correspond à la sélection des contributions des trajectoires courtes. Dans notre expérience, un diaphragme est



**Fig. 4.22:** Spectre de l'harmonique 19 obtenu en focalisant à  $z = -0.3b$  (trait mixte), 0 (trait continu), et  $0.2b$  (tirets).

placé en champ lointain pour éliminer le faisceau infrarouge annulaire de génération. Ce diaphragme joue également le rôle de sélecteur des trajectoires courtes.

Une confirmation de la sélection des trajectoires courtes peut être obtenue en observant les spectres harmoniques. Nous représentons sur la figure 4.22 le spectre de photoélectrons de l'harmonique 19 obtenu à trois positions différentes de la lentille. Une distorsion du spectre associée à un décalage vers le bleu est visible lorsque le laser est focalisé exactement dans le jet, à  $z = 0$ . Cet effet est caractéristique d'une ionisation importante du milieu générateur, ce qui est cohérent avec l'éclairement laser correspondant ( $4.7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). Les spectres mesurés en focalisant avant et après le jet sont similaires. On n'observe pas sur les mesures d'élargissement spectral ou de piédestal quand le laser est focalisé après le jet, comme il en apparaît en général lorsque les trajectoires longues contribuent (Salières et al., 2001).

La conclusion partielle à ce stade de l'étude est que nous parvenons à effectuer une sélection robuste des trajectoires courtes, et ce même quand le laser est focalisé dans ou après le jet, grâce à un diaphragme placé en champ lointain. Il subsiste tout de même un effet important de la focalisation sur les profils temporels qui nécessite une explication.

#### 4.9.4 Influence de la focalisation sur la synchronisation des trajectoires courtes

L'étude de la synchronisation des harmoniques sur les trajectoires courtes a révélé l'existence d'une dérive de fréquence attoseconde dans l'émission, qui dépend fortement de l'éclairement laser. Or, lorsque l'on change la position relative du foyer laser et du jet, l'éclairement vu par le milieu est modifié et la structure attoseconde en est affectée. La synchronisation est la meilleure quand l'éclairement est maximal, c'est-à-dire pour

une focalisation au centre du jet, et se dégrade quand le foyer s'éloigne. Afin de vérifier l'accord entre cette interprétation et les résultats expérimentaux, nous effectuons des simulations "atome-unique" du paramètre de blocage de phase.

L'éclairement laser à chaque position de la lentille est évalué en considérant que le laser a un faisceau de qualité  $M^2 = 2$ . Pour chaque  $z$ , la dérive de fréquence attoseconde est évaluée à partir des résultats théoriques sur la dépendance de  $\Delta t_e$  en fonction de l'éclairement (figure 4.11). Le train d'impulsion attoseconde correspondant est alors calculé en superposant 10 harmoniques de même amplitude, et permet de calculer le paramètre de blocage de phase  $\tilde{\gamma}_t^u$ . Nous effectuons également les calculs pour les paramètres correspondant aux calculs TDSE. Les résultats sont présentés sur la figure 4.21.

Comme l'étude qualitative le laissait entrevoir, le blocage de phase donné par la réponse de l'atome unique pour les trajectoires courtes est maximal quand  $z = 0$ . La comparaison entre  $\tilde{\gamma}_t^u$  et  $\tilde{\gamma}_t^{exp}$  amène deux remarques. Tout d'abord, l'accord est plutôt bon quand le foyer n'est pas trop proche du jet, c'est à dire pour  $|z| > 0.3b$ . Le comportement théorique est symétrique par rapport au centre du jet, ce qui est proche des résultats expérimentaux. La synchronisation expérimentale est légèrement plus mauvaise que celle donnée par les calculs, mais cette tendance a déjà été observée et discutée. D'autre part, dans la zone la plus proche du jet, le blocage de phase mesuré semble saturer et même se dégrader en  $z = 0$ . Or, les mesures de spectres harmoniques présentées sur la figure 4.22 indiquent un décalage vers le bleu caractéristique d'une importante ionisation dans cette zone, où l'éclairement est supérieur à  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. L'étude de la dérive de fréquence attoseconde en fonction de l'éclairement a montré qu'à de telles valeurs, l'ionisation dégradait la synchronisation des harmoniques (figure 4.11), et l'effet observé ici en est une signature.

Nous parvenons donc grâce à la réponse de l'atome unique à comprendre tous les effets observés expérimentalement. Ceci montre une fois encore l'efficacité de la sélection des trajectoires courtes. Nous pouvons utiliser cette grille de lecture pour réinterpréter les résultats obtenus par le calcul TDSE sur la figure 4.21. Lorsque le foyer est bien avant le jet, les trajectoires courtes sont sélectionnées par accord de phase mais leur synchronisation est médiocre en raison de la faiblesse de l'éclairement dans le jet. Le profil temporel correspondant est donc très distordu, et le blocage de phase est mauvais. Quand  $z$  augmente, la synchronisation s'améliore, et comme le montre le résultat du calcul atome unique  $\tilde{\gamma}_t$  augmente. Lorsque le foyer atteint  $z = -0.4b$ , l'éclairement laser devient supérieur à  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et l'ionisation est alors importante :  $\tilde{\gamma}_t^{TDSE}$  sature. Enfin, quand  $z$  est nul la seconde trajectoire apparaît et rend la comparaison avec le calcul atome unique impossible.

La valeur optimale du blocage de phase dans le calcul TDSE est obtenue en  $z = -0.45b$ , position pour laquelle les auteurs représentent la différence de phase entre deux harmo-

niques consécutives en fonction de l'ordre dans (Gaarde and Schafer, 2002a). Il s'agit d'une grandeur moyennée spatialement et temporellement. Ils obtiennent un comportement linéaire croissant, caractéristique d'une phase spectrale quadratique, ce qui est cohérent avec les calculs "atome unique". A partir de l'évaluation de la pente de cette droite, nous obtenons une dérive de fréquence  $\Delta t_e \approx 30as$ . L'éclairement correspondant est d'environ  $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , et la valeur de  $\Delta t_e$  est donc en excellent accord avec celle donnée par le calcul de la réponse de l'atome unique pour les trajectoires courtes (figure 4.11). Ce point constitue une confirmation supplémentaire du fait que les effets macroscopiques dans les conditions expérimentales bien choisies peuvent être réduits à une sélection des trajectoires courtes. De plus, le calcul atome-unique à l'éclairement crête donne une bonne évaluation du comportement macroscopique moyenné temporellement et spatialement, ce qui est remarquable.

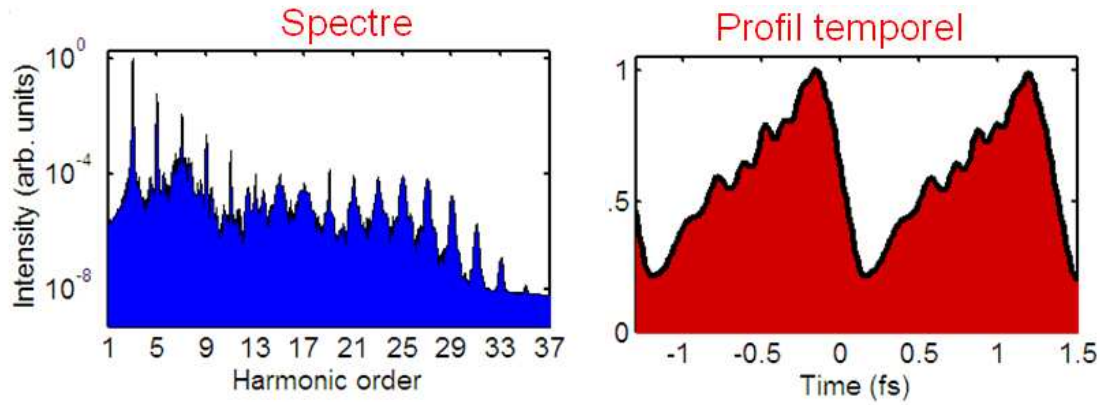
Nous avons donc montré que l'utilisation d'un diaphragme en champ lointain permettait d'effectuer une sélection efficace et robuste des contributions des trajectoires courtes dans l'émission harmonique. Les comparaisons des résultats expérimentaux au calcul de la réponse de l'atome unique, ainsi qu'aux calculs TDSE, s'avère excellente, ce qui confirme que les autres effets de propagation sont négligeables tant que l'ionisation du milieu générateur n'est pas trop importante.

## 4.10 Sélection spectrale et compression d'impulsions attosecondes

### 4.10.1 Elimination des ordres harmoniques faibles

L'étude de la synchronisation des harmoniques a montré que pour produire des impulsions attosecondes brèves, il fallait sélectionner les contributions des trajectoires courtes et augmenter l'éclairement laser afin de diminuer la dérive de fréquence attoseconde dans l'émission. Cependant, un point essentiel a été passé sous silence jusqu'à présent : le problème de la sélection spectrale. En effet, le rayonnement émis par le milieu comporte les harmoniques basses, dont nous avons vu que le comportement n'était pas prévisible par les calculs effectués dans l'approximation du champ fort. Les harmoniques très faibles, d'ordres 3, 5... sont très intenses et vont dominer la structure temporelle du rayonnement. Nous représentons à titre d'illustration de ce point le résultat de calculs TDSE prenant en compte la propagation effectués par les équipes de Lund et Bâton Rouge sur la figure 4.23 (Lopez-Martens et al., 2005). Le spectre est clairement dominé par les harmoniques faibles, et le profil temporel ne comporte pas vraiment d'impulsions attosecondes, mais plutôt une modulation d'amplitude.

Il est donc nécessaire d'éliminer les ordres harmoniques faibles pour obtenir un train



**Fig. 4.23:** Profils spectral et temporel obtenus en superposant toutes les harmoniques générées dans l'argon à  $1.4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. D'après [Lopez-Martens et al. \(2005\)](#)

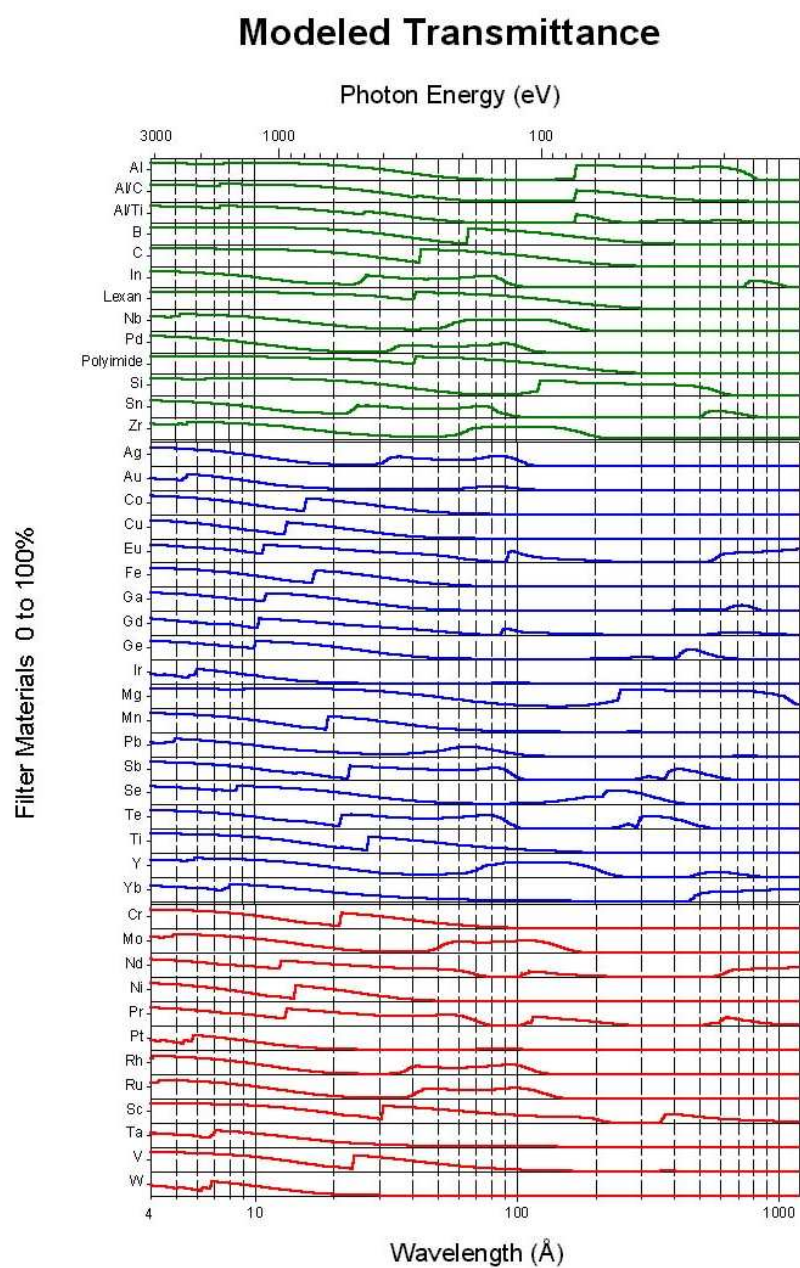
d'impulsions attosecondes utilisable dans des expériences d'applications. Cependant, avant de s'intéresser aux moyens de réaliser une telle sélection, nous pouvons noter qu'il existe des situations où c'est le détecteur lui-même qui a une bande passante déterminée et effectue le filtrage. Par exemple, lors de la photoionisation d'un atome par un peigne d'harmoniques, l'atome ne sera sensible qu'aux harmoniques dont l'énergie est supérieure à son potentiel d'ionisation. Le train effectif vu par l'atome sera alors différent du rayonnement total reçu. Sa structure attoseconde peut être déterminée à partir de nos mesures et de la section efficace d'ionisation.

Les ordres faibles peuvent être éliminés par filtrage en propageant le rayonnement harmonique dans un milieu qui les absorbe. La plupart des filtres métalliques sont opaques dans le visible et le proche ultraviolet. Nous représentons sur la figure 4.24 les transmissions de filtres communs données par la compagnie Luxel. Les matériaux intéressants sont ceux qui coupent les énergies inférieures à 10-15 eV, et transmettent dans une gamme inférieure à 150 eV. L'aluminium, le magnésium, le silicium, le zirconium et l'yttrium peuvent convenir selon l'énergie moyenne du train attoseconde voulue.

#### 4.10.2 Compression attoseconde dans un film solide

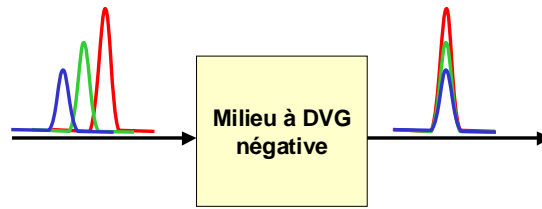
Même si les harmoniques basses sont supprimées, les impulsions du train comportent un élargissement dû à la dérive de fréquence attoseconde. Nous avons vu que l'existence d'une telle dérive imposait un nombre optimal d'harmoniques  $N_{opt}$  à sélectionner pour obtenir les impulsions les plus brèves possibles. Il est possible d'ajuster le nombre d'harmoniques présentes après filtrage en modifiant l'éclairement laser, et donc la position de la coupure. Cependant, la dérive de fréquence  $\Delta t_e$  dépendant elle-même de cet éclairement, le compromis peut être délicat à trouver. Une solution à ces problèmes serait de rendre les harmoniques synchrones et ainsi de comprimer les impulsions attosecondes.





**Fig. 4.24:** Transmission des filtres Luxel.

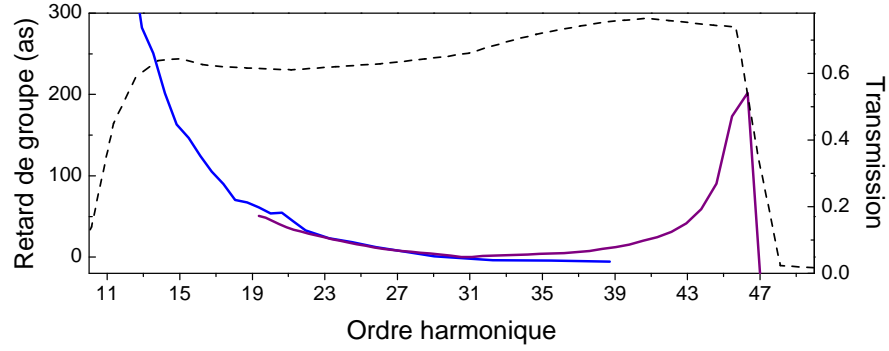




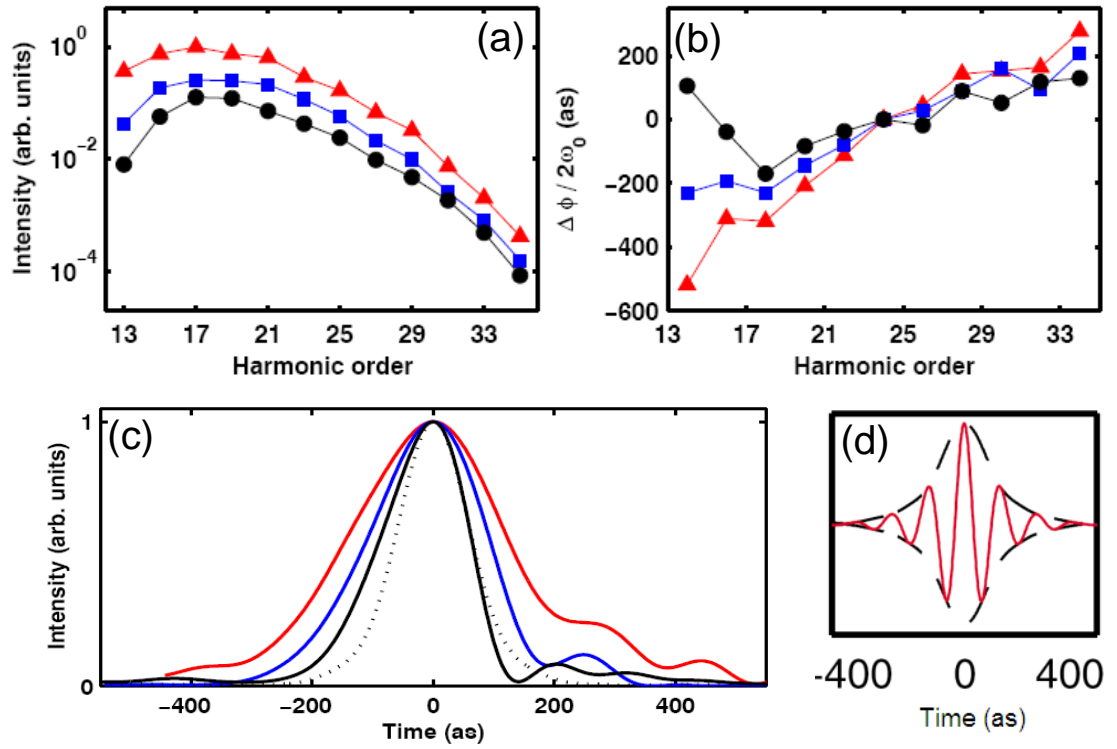
**Fig. 4.25:** Principe de la compression d'impulsion attosecondes.

Le manque de synchronisation des harmoniques est intrinsèque au processus de génération. Son caractère extrêmement régulier permet toutefois d'en envisager simplement la correction. Ainsi, dans un milieu à dispersion de vitesse de groupe (DVG) négative, les fréquences les plus élevées voyagent plus vite que les plus faibles. Les harmoniques hautes étant "en retard" dans l'émission, la propagation dans un tel milieu leur permettrait de rattraper les basses (figure 4.25). Nous avons présenté au paragraphe précédent les transmissions de divers composants métalliques. La propagation dans ces filtres n'induit pas seulement une modification des amplitudes des différentes composantes spectrales, mais peut également affecter la phase spectrale du rayonnement. La figure 4.26 représente le retard de groupe en fonction de l'énergie lors de la transmission dans un film d'aluminium de 200 nm d'épaisseur. Jusqu'à l'harmonique 35, le retard diminue lorsque l'énergie augmente, ce qui est caractéristique d'une DVG négative. Cette DVG diminue avec l'énergie, et devient positive ou nulle selon la source des données pour un ordre supérieur à 39, c'est à dire au voisinage du seuil d'absorption. Un tel filtre peut donc être utilisé pour compenser la dérive de fréquence du rayonnement harmonique. La modification de l'épaisseur de matériau traversée permet d'ajuster finement le facteur de compression, ce qui rend la méthode très flexible. Une étude théorique récente propose d'employer une technique similaire pour compresser des impulsions attosecondes plus énergétiques (Kim et al., 2004). En utilisant un filtre d'étain de 700 nm d'épaisseur, il serait possible d'obtenir des impulsions de durée inférieure à 50 as centrées sur l'harmonique 100.

Les mesures RABBITT des phases harmoniques ont été réalisées à Lund en fonction de l'épaisseur d'aluminium traversée, avec le dispositif expérimental présenté au chapitre précédent (Lopez-Martens et al., 2005). Pour des raisons pratiques, cette épaisseur était modifiée en ajoutant successivement des filtres de 200 nm d'épaisseur. La figure 4.27(b) présente les instants d'émission mesurés pour les harmoniques 13 à 35 générées dans l'argon à  $1.4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Toutes les harmoniques parvenant dans le spectromètre sont ici mesurées. L'effet de la DVG négative de l'aluminium est clairement visible : lorsque l'épaisseur d'aluminium traversée augmente, la pente de la courbe, qui n'est autre que la dérive de fréquence  $\Delta t_e$ , diminue. Elle est quasiment nulle lorsque l'on utilise trois filtres. Dans ce cas, on remarque que les harmoniques les plus faibles sont sur-compensées : la dispersion de vitesse de groupe étant plus forte dans cette région (figure 4.26), elle



**Fig. 4.26:** Transmission (tirets) et retard de groupe (ligne continue) induits par la propagation dans 200 nm d'aluminium. Les données de plus basse énergie proviennent de Palik (1998), et celles de plus hautes énergies du CXRO (CXRO, 2005).



**Fig. 4.27:** (a) Intensités et (b) instants d'émission des harmoniques après propagation dans 1 (triangles), 2 (carrés) et 3 (disques) filtres d'aluminium de 200 nm d'épaisseur. (c) : Profils temporels correspondants pour une impulsion attoseconde du train. Les pointillés représentent la limite de Fourier. (d) : Champ électrique de l'impulsion comprimée. D'après Lopez-Martens et al. (2005)

annule complètement la dérive de fréquence positive et induit même une faible dérive de fréquence négative. Un tel effet n'existe pas pour les ordres les plus élevés, puisque la DVG de l'aluminium y est presque nulle. Néanmoins, ces harmoniques se trouvant dans la coupure, leur synchronisation est naturellement meilleure (la dernière harmonique mesurée ne satisfait pas cette propriété, mais est très faible et contribue peu au train d'impulsions attosecondes).

L'effet de la compensation de la dérive de fréquence sur le profil temporel des impulsions attosecondes est présenté sur la figure 4.27(c). L'impulsion voit sa durée à mi-hauteur réduite de 290 as avec un filtre à 170 as avec trois filtres. Le profil de l'impulsion comprimée est très proche de la limite de Fourier. Cette impulsion ayant une fréquence centrale de 30 eV et une largeur spectrale de 30 eV, elle est quasiment monocycle : la représentation du champ électrique temporel montre qu'il n'y a que 1.2 oscillation à mi-hauteur. On parvient ainsi grâce à un contrôle fin des amplitudes et phases spectrales harmoniques à atteindre les limites imposées par la période de l'oscillation du champ électrique UVX.

L'utilisation de trois filtres d'aluminium de 200 nm s'accompagne d'une importante diminution des intensités harmoniques (figure 4.27(a)). La transmission théorique de l'aluminium présentée sur la courbe 4.26 ne suffit pas à expliquer cet effet. Il existe une atténuation supplémentaire qui peut être attribuée à la présence d'une couche d'alumine  $Al_2O_3$  due à l'oxydation du filtre à l'air. Cette couche introduit également une modification de la DVG du filtre. Une fois l'épaisseur optimale d'aluminium déterminée, il serait plus judicieux d'utiliser un filtre unique de 600 nm afin de perdre moins d'énergie.

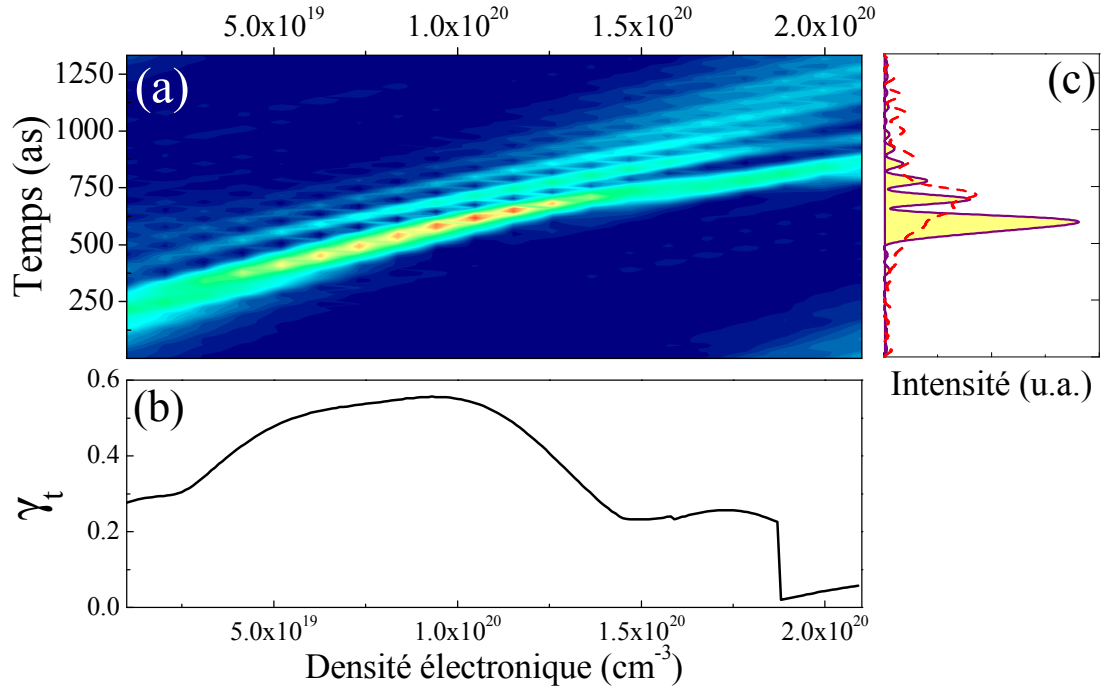
### 4.10.3 Le compresseur plasma

L'emploi de filtres métalliques n'est pas la seule solution pour compenser la dérive de fréquence positive des impulsions attosecondes. Il est également possible d'utiliser la dispersion par les électrons libres dans un plasma complètement ionisé. L'avantage d'un tel milieu est que contrairement aux filtres métalliques, il n'absorbe pas le rayonnement et transmet donc toute l'énergie.

Nous utilisons dans ce paragraphe le système international d'unités. La relation de dispersion d'un plasma de densité électronique  $n_e$  est donnée par

$$\frac{\omega}{k} = \frac{c}{\sqrt{1 - \omega_p^2/\omega^2}} \approx \frac{c}{1 - \omega_p^2/2\omega^2} \quad (4.8)$$

avec  $\omega_p^2 = e^2 n_e / \epsilon_0 m_e$ . Le calcul de la vitesse de groupe donne  $v_g = d\omega/dk = c(1 - \omega_p^2/2\omega^2)$  (c'est à dire  $v_\phi v_g = c^2$ ). Cette grandeur augmente avec  $\omega$ , ce qui signifie que le plasma a une dispersion de vitesse de groupe négative.



**Fig. 4.28:** (a) Profil temporel d'une impulsion attoseconde du train obtenu par superposition des harmoniques 25 à 69 générées dans le néon à  $3.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , après propagation dans un plasma de 5 mm de long et de densité électronique  $n_e$ . (b) Paramètre de blocage de phase correspondant. (c) Profil temporel non compressé (tirets) et optimal obtenu à  $n_e = 9.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  (ligne remplie).

Nous nous sommes intéressés à la compensation de la dérive de fréquence dans le cas de la génération dans le néon à  $3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (figure 4.9). Nous utilisons les phases et amplitudes harmoniques de la mesure RABBIT, et y ajoutons un terme de phase correspondant à la propagation dans  $l = 5$  mm de plasma complètement ionisé de densité électronique variable  $n_e$  :

$$\varphi(\omega) = -\frac{e^2 \lambda_0 n_e}{4\pi \epsilon_0 c^2 m_e q} \quad (4.9)$$

où  $q$  est l'ordre harmonique. La figure 4.28(a) présente le profil temporel d'une impulsion attoseconde du train à la sortie du plasma en fonction de sa densité. Les profils sont normalisés, de telle sorte qu'une impulsion brève a une amplitude crête élevée. La compensation de la dérive de fréquence est efficace tant que la densité électronique n'est pas trop élevée. Afin de quantifier cette efficacité, nous représentons sur la figure 4.28(b) l'évolution du paramètre de blocage de phase  $\tilde{\gamma}_t$  (équation 4.7). Il apparaît que la durée d'impulsion est optimale lorsque  $n_e = 9.3 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>. Le profil temporel comporte néanmoins des rebonds après le pic principal. Cet effet est dû au fait que la dispersion de vitesse de groupe du plasma n'est pas constante, c'est à dire que la phase calculée par l'équation 4.9 n'est pas quadratique. Dans la situation optimale, les ordres faibles sont sur-compensés tandis que les plus élevés ne le sont pas assez. On parvient tout de même à réduire la durée d'impulsion d'un facteur 2 environ, de 150 as à 80 as (figure 4.28(c)).

## 4.11 Conclusion

L'étude approfondie de la synchronisation des harmoniques comporte deux aspects. D'une part, nous avons caractérisé la dynamique des électrons dans le processus de génération. Un accord remarquable avec les prévisions du modèle de Lewenstein a été obtenu, et confirme la pertinence de cette approche. La dynamique des électrons qui se recombinent a été mesurée avec une précision de 50 as, et une telle approche permet donc de caractériser des effets très fins. L'influence de divers paramètres sur cette synchronisation a été étudiée : l'éclairement laser joue un rôle majeur et est l'élément le plus critique ; de manière assez surprenante en revanche, l'état de polarisation du champ ne modifie pas significativement la synchronisation des différentes harmoniques ; la pression et la nature du gaz n'interviennent que dans la mesure où ils changent le régime d'ionisation et peuvent introduire des effets de propagation supplémentaires ; par contre, l'étude de la synchronisation dans les molécules révèle des différences faibles mais reproductibles, qui contiennent sans doute de l'information sur la structure moléculaire. L'étude de ce dernier point mériterait d'être étendue en mesurant les phases relatives de molécules alignées, et ainsi de reconstruire complètement la fonction d'onde complexe de l'orbitale moléculaire la plus haute occupée.

Le second aspect de ce travail concerne la production d'impulsions attosecondes brèves. De ce point de vue, les conditions optimales sont : la génération à éclairement élevé, mais en dessous de l'éclairement de saturation du gaz ; l'élimination des trajectoires longues par filtrage spatial en champ lointain ; l'élimination des harmoniques faibles perturbatives par filtrage spectral, et plus généralement la sélection des harmoniques de la fin du plateau et de la coupure (qui sont synchronisées). De plus, la dérive de fréquence attoseconde qui existe même dans ces conditions peut être compensée par propagation dans un milieu à dispersion de vitesse de groupe négative, tel qu'un plasma ou certains filtres métalliques. Ces éléments devraient permettre de produire des trains d'impulsions sub-100 as, accordables en fréquence ([Kim et al., 2004](#)). Notre analyse reste valable dans le cas de la génération d'impulsions attosecondes uniques par des impulsions lasers monocycles, en négligeant les effets non-adiabatiques.



## Chapitre 5

# Caractérisation complète d'impulsions attosecondes quelconques : la méthode FROGCRAB

L'étude de la problématique générale de la caractérisation d'une impulsion lumineuse avec un détecteur intégrateur montre qu'il est nécessaire d'utiliser au moins un filtre non-stationnaire et un filtre stationnaire dans la chaîne de mesure ([Walmsley and Wong, 1996](#)). Par filtre stationnaire, on entend un filtre tel que la sortie ne dépende pas de l'instant d'arrivée de l'impulsion, c'est à dire dont la fonction de transfert est invariante par une translation dans le temps.

En général, on utilise une réplique de l'impulsion à caractériser et un effet non-linéaire pour réaliser un filtre non-stationnaire. C'est le cas par exemple dans les mesures d'autocorrélation d'intensité : on mesure un signal à deux photons induit par l'impulsion et une réplique décalée en temps. Le balayage du délai permet d'accéder à une durée moyenne de l'impulsion, en supposant une forme déterminée de profil temporel (gaussien par exemple). La relative faiblesse des flux UVX harmoniques rend la transposition directe de ces méthodes difficile. Des mesures d'autocorrélation d'ordre deux de trains d'impulsions attosecondes ou d'impulsions uniques ont tout de même été récemment réalisées, *via* l'ionisation muti-photonique UVX d'un gaz cible ([Tzallas et al., 2003](#); [Sekikawa et al., 2004](#))

Cependant, l'utilisation d'un tel effet non-linéaire n'est absolument pas nécessaire. Nous nous concentrons donc ici plutôt sur les possibilités de caractériser des impulsions attosecondes par filtrage linéaire non-stationnaire. Induire une modulation temporelle de l'amplitude ou de la phase d'une impulsion UVX est très difficile. Pour contourner



cette difficulté, on peut utiliser des paquets d'ondes électroniques comme intermédiaire dans la chaîne de mesure : en photoionisant un gaz avec une impulsion lumineuse, on crée un paquet d'électrons dont les propriétés temporelles reflètent celles de l'impulsion ionisante. La caractérisation du paquet d'ondes électronique permet de remonter aux propriétés de l'impulsion UVX initiale. Elle est rendue possible par la présence d'un champ laser infrarouge dans le milieu de détection, qui joue le rôle de *modulateur de phase ultrarapide* du paquet d'ondes électronique. Nous verrons comment ce modulateur peut être utilisé pour obtenir une caractérisation complète d'impulsions attosecondes quelconques.

## 5.1 Le champ électrique comme modulateur de phase ultrarapide

### 5.1.1 Un paquet d'ondes électronique, réplique de l'impulsion UVX

Nous considérons un atome soumis au champ électrique UVX  $\mathbf{E}_X(t)$ . Dans l'approximation d'un seul électron actif, on peut écrire la probabilité de transition de l'état fondamental à l'état du continuum  $|\mathbf{v}\rangle$  d'impulsion  $\mathbf{v}$  comme :

$$a_{\mathbf{v}} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, \mathbf{d}_{\mathbf{v}} \mathbf{E}_X(t) e^{i(W+I_p)t} \quad (5.1)$$

Cette expression résulte de la théorie des perturbations au premier ordre.  $W = \mathbf{v}^2/2$  est l'énergie de l'état final du continuum,  $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$  l'élément de matrice de transition dipolaire du fondamental à l'état  $|\mathbf{v}\rangle$ , et  $I_p$  est le potentiel d'ionisation de l'atome.

L'équation (5.1) permet de connecter le champ UVX et le paquet électronique qu'il génère. Le spectre des photoélectrons  $a_{\mathbf{v}}$  est relié à celui du champ attoseconde à la fois en amplitude et en phase. Dans le cas où  $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$  ne dépendrait pas de  $\mathbf{v}$ , alors l'intégrale étant simplement une transformée de Fourier, les deux spectres complexes seraient proportionnels, ce qui signifie que le paquet d'ondes électronique serait la réplique exacte du champ électromagnétique attoseconde.

Dans la pratique la probabilité de photoionisation dépend de l'énergie de l'électron éjecté, et donc  $|\mathbf{d}_{\mathbf{v}}|$  dépend de  $\mathbf{v}$ . Cette dépendance est donnée par la section efficace d'ionisation du gaz considéré, dont les valeurs sont connues et tabulées. Il est donc possible de la corriger. D'autre part, la phase de l'élément de transition dipolaire  $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$  peut varier avec  $\mathbf{v}$ , notamment par exemple au voisinage de résonances dans le continuum. Cependant, nous négligerons cette dépendance en considérant que l'on travaille loin du seuil et sur des largeurs de bande suffisamment faibles pour que les variations éventuelles de la phase avec l'énergie ne soient pas significatives. Dans le cas contraire, il faudrait

ici aussi effectuer une correction, à partir de calculs de ces phases par exemple, afin d'obtenir la phase du champ.

La conclusion de cette étude préliminaire est que le paquet d'électrons constitue bien une réplique fidèle de l'impulsion attoseconde ionisante. La caractérisation complète du paquet d'ondes électronique peut donc permettre d'obtenir toute l'information sur le champ attoseconde, à condition de connaître la réponse de l'atome utilisé pour la conversion, et peut être réalisée comme nous allons le voir grâce à l'utilisation d'un champ laser perturbateur lors de l'étape d'ionisation.

### 5.1.2 Photoionisation UVX en présence d'un champ laser

Nous nous intéressons à présent à la photoionisation d'un atome par un champ attoseconde en présence d'un champ laser infrarouge perturbateur  $\mathbf{E}_L(t)$ . On considère le processus en deux étapes successives : ionisation par le champ attoseconde, puis mouvement de l'électron dans le continuum sous l'effet du champ infrarouge. L'électron est produit par photoionisation UVX et a une énergie  $\Omega_X$  lorsqu'il arrive dans le continuum. Si  $\Omega_X \gg I_p$ , nous sommes assurés que l'effet du potentiel ionique sur le mouvement de l'électron sera négligeable (Dykhne and Yudin, 1977, 1978). Une fois placé dans le continuum, l'électron est donc considéré comme libre. Cette approximation est une extension de l'approximation du champ fort (SFA) (Keldysh, 1965; Lewenstein et al., 1994).

Dans cette approximation, et toujours dans l'approximation d'un seul électron actif, on peut calculer la probabilité de transition  $a_{\mathbf{v}}(\tau)$  du fondamental à l'état  $|\mathbf{v}\rangle$  du continuum en résolvant formellement l'équation de Schrödinger. On obtient :

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{v}_0(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i[I_p t - \int_t^{+\infty} dt' \mathbf{v}_0^2(t')/2]} \quad (5.2)$$

où  $\mathbf{v}_0(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$  est l'impulsion instantanée de l'électron libre dans le champ laser, et  $\mathbf{A}(t)$  le potentiel vecteur de ce champ dans la jauge de Coulomb ( $\mathbf{E}_L(t) = -\partial\mathbf{A}/\partial t$ ). Les impulsions laser et attoseconde sont décalées temporellement d'un retard  $\tau$ . En l'absence de champ infrarouge, on retrouve l'expression donnée par la théorie des perturbations au premier ordre pour la photoionisation UVX (Eq. (5.1)).

Il est possible de donner une interprétation intuitive de la forme de cette équation.  $a_{\mathbf{v}}$  est la probabilité de transition du fondamental jusqu'à l'état final d'impulsion  $\mathbf{v}$ . A chaque instant  $t$ , le champ UVX injecte des électrons dans le continuum, avec une probabilité donnée par le produit du champ par l'élément de matrice de transition dipolaire correspondant à l'impulsion juste après ionisation  $\mathbf{v}_0(t)$ . Une fois dans le continuum, les électrons sont accélérés par le champ infrarouge. Dans cette phase d'accélération, le moment canonique  $\mathbf{v} - \mathbf{A}$  est conservé (classiquement,  $\partial\mathbf{v}/\partial t = -\mathbf{E}_L = \partial\mathbf{A}/\partial t$ , soit

$\partial(\mathbf{v} - \mathbf{A})/\partial t = 0$ ). Par conséquent, les électrons d'impulsion finale  $\mathbf{v}$  (correspondant à  $\mathbf{A} = 0$ ) sont ceux qui avaient pour impulsion  $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v} + \mathbf{A}$  juste après l'ionisation. Le terme exponentiel prend en compte la phase  $I_p t$  accumulée par l'électron dans l'état fondamental jusqu'à l'instant d'ionisation, et la phase accumulée lors de l'accélération dans le continuum qui est l'intégrale de l'énergie instantanée de l'électron libre entre l'instant d'ionisation et la détection.

Nous pouvons réarranger l'équation 5.2 afin de mieux analyser l'effet du champ infrarouge, en développant  $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v} + \mathbf{A}$  dans l'intégrale de phase :

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{v}+\mathbf{A}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W+I_p)t} \quad (5.3)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' (\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2) \quad (5.4)$$

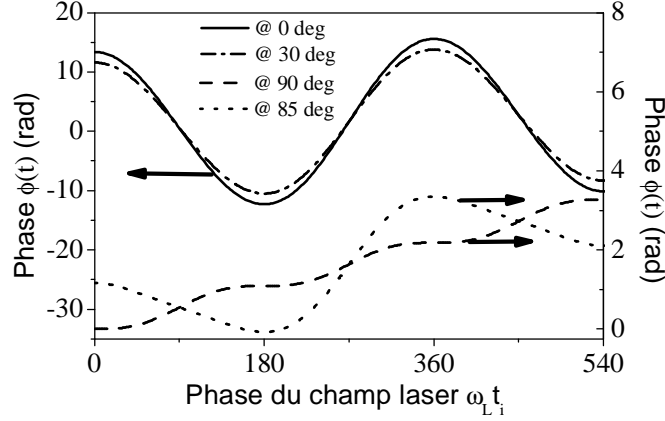
En comparant cette équation à celle obtenue en l'absence de champ laser (5.1), il apparaît clairement que l'effet de ce champ est d'induire une modulation de phase  $\phi$  du paquet d'électrons attoseconde. Nous étudions cette modulation dans le paragraphe suivant.

### 5.1.3 Allure de la phase induite par le laser

Pour l'étude de  $\phi(t)$ , nous considérons un champ laser polarisé linéairement  $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t) \cos \omega_0 t$ , dont l'enveloppe  $\mathbf{E}_0$  varie suffisamment lentement pour que l'approximation de l'enveloppe lentement variable soit valide. Nous négligeons donc les effets non-adiabatiques qui peuvent intervenir avec des impulsions de quelques cycles optiques en considérant qu'ils n'apportent que de faibles corrections (il serait possible d'étendre cette étude au cas d'impulsions très brèves en calculant directement la modulation de phase à partir de la formule 5.3). Dans ce cadre, le potentiel vecteur est  $\mathbf{A}(t) \approx -\mathbf{E}_0(t)/\omega_0 \sin \omega_0 t$ . On obtient alors l'expression suivante de la phase induite par le champ laser :

$$\begin{aligned} \phi(t) &= \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t) \\ \phi_1(t) &= - \int_t^{+\infty} dt U_p(t) \\ \phi_2(t) &= (\sqrt{8W U_p(t)}/\omega_0) \cos \theta \cos \omega_0 t \\ \phi_3(t) &= -(U_p(t)/2\omega_0) \sin 2\omega_0 t \end{aligned} \quad (5.5)$$

$U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_0^2$  est l'énergie pondéromotrice d'un électron dans le champ laser à l'instant  $t$ . L'angle  $\theta$  correspond à l'angle entre le vecteur vitesse des électrons détectés et la polarisation du laser.



**Fig. 5.1:** Modulation de phase induite par le champ laser en fonction du temps, à différents angles d'observation, pour  $W = 100$  eV,  $I = 9 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>

$\phi_1(t)$  ne comporte pas de terme oscillatoire et évolue lentement avec  $t$ .  $\phi_2(t)$  oscille à la fréquence du laser, et  $\phi_3(t)$  à la fréquence double. Dans la plupart des cas,  $U_p \ll W$ , et donc  $\phi_2(t)$  est le terme dominant de la modulation de phase devant  $\phi_1(t)$  et  $\phi_3(t)$ , sauf si  $\theta \approx 90^\circ$ . La dépendance angulaire de la modulation de phase est en  $\cos \theta$ , ce qui signifie qu'elle varie peu au voisinage de  $\theta = 0$ .

L'allure de la modulation de phase  $\phi(t)$  induite sur un paquet d'électrons d'énergie centrale non perturbée  $W = 100$  eV est présentée sur la figure 5.1, à différents angles d'observation. L'éclairement laser utilisée pour le calcul est  $9 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, ce qui correspond à une énergie pondéromotrice de l'ordre de 0.5 eV. Nous observons une dépendance importante du profil en fonction de  $\theta$  (les courbes à  $90^\circ$  et  $85^\circ$  d'une part, et  $0$  et  $30^\circ$  degrés d'autre part, ont des échelles différentes sur la figure). Ceci indique que pour obtenir une modulation de phase bien définie du paquet d'ondes électronique, il est nécessaire de sélectionner une direction donnée d'observation (Drescher et al., 2001; Kienberger et al., 2004). Cependant, nous voyons qu'une variation de  $30^\circ$  sur  $\theta$  autour de  $0$  modifie peu la modulation, tandis qu'il suffit d'une variation de  $5^\circ$  autour de  $90^\circ$  pour en changer considérablement le profil. Ce dernier effet est dû à l'apparition du terme  $\phi_2(t)$ . Les mesures effectuées autour de  $0^\circ$  auront donc une meilleure acceptance angulaire (typiquement  $30^\circ$ , comme nous le verrons). En terme de profondeur de modulation, nous observons que la modulation de phase est bien plus importante autour de  $\theta = 0$ , lorsque  $\phi_2(t)$  est le terme dominant. Cette profondeur atteint des amplitudes supérieures à  $2\pi$  même à un éclairement laser modéré, grâce au facteur multiplicatif  $\sqrt{W}$ . Autour de  $\theta = 90^\circ$ , les deux autres contributions sont clairement visibles :  $\phi_1(t)$  est l'intégrale temporelle de l'éclairement laser, et augmente donc lentement au cours du temps, tandis que  $\phi_3(t)$  oscille à  $2\omega_0$ .

La sélection angulaire des électrons peut être effectuée de différentes manières : on

peut utiliser une transition atomique d'ionisation elle-même sélective angulairement, ce qui donne des vitesses finales des électrons bien définies ; on peut ne détecter que les électrons émis dans un cône donné en effectuant une sélection angulaire dans le spectromètre de photoélectrons ; enfin, il est possible de réaliser des mesures de spectres d'électrons résolus en angle, grâce au Velocity Map Imaging ([Eppink and Parker, 1997](#)).

La situation d'observation à  $0^\circ$  est favorable du point de vue de l'acceptance angulaire et de la profondeur de modulation. Cependant,  $\phi_2(t)$  dépend de  $W$ , et la modulation de phase n'est donc pas uniforme sur le spectre d'électrons. Ce point peut être problématique car les techniques de métrologie optique que nous allons tenter de transposer dans l'UVX reposent sur des modulations de phase temporelle indépendantes de l'énergie. Des erreurs systématiques pourront donc apparaître dans les résultats, notamment dans le cadre de la caractérisation d'impulsions très large bande ( $\Delta W \approx W$ ). Une solution pour éviter de telles erreurs est d'effectuer la mesure autour de  $\theta = 90^\circ$ , mais les éclairagements laser à employer sont alors plus importants, et surtout l'angle de détection devra être considérablement réduit.

## 5.2 Utilisation du modulateur de phase

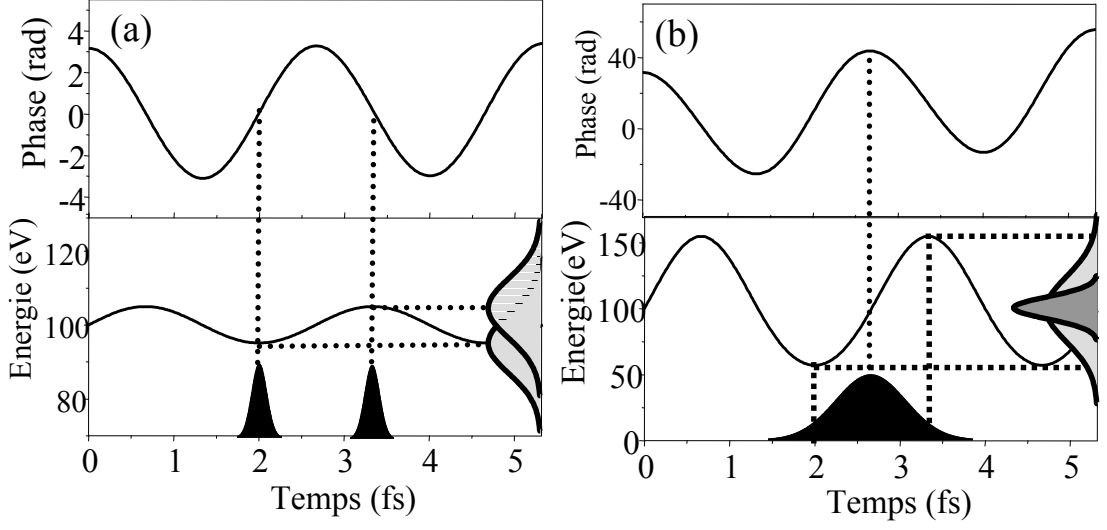
### 5.2.1 Effet du modulateur de phase sur le paquet électronique

Afin d'étudier l'effet d'une modulation de phase temporelle sur le paquet d'ondes électronique, nous raisonnons à partir de transformées de Fourier complexes pour passer du domaine temporel au domaine spectral.

*Une phase linéaire dans le domaine temporel  $\phi(t) = W_0 t$  est équivalente à un décalage dans le domaine spectral :  $F(E_X(t)e^{iW_0 t}) = F(E_X(t)) \otimes F(e^{iW_0 t}) = E_X(W) \otimes \delta_{W_0} = E_X(W - W_0)$*

D'une manière générale, l'effet d'une phase quelconque est d'induire un décalage en énergie *dépendant du temps*, donné par  $\delta W = -\partial\phi/\partial t$ . Ainsi, chaque tranche temporelle du paquet d'électrons peut subir un décalage spectral différent. Les différentes composantes temporelles sont dans ce cas séparées spectralement, ce qui produit une modification de la largeur spectrale.

La modulation de phase induite par le champ laser sur le paquet d'électrons peut avoir des allures variables (figure 5.1). Nous considérons le cas de l'observation à  $\theta = 0^\circ$ , et la modulation est donc principalement oscillante à la fréquence laser. Nous étudions son effet sur une impulsion attoseconde gaussienne. En fonction du retard entre les champs UVX et infrarouge, l'effet de la modulation sur le paquet d'ondes électronique sera différent. Deux cas particuliers sont intéressants :



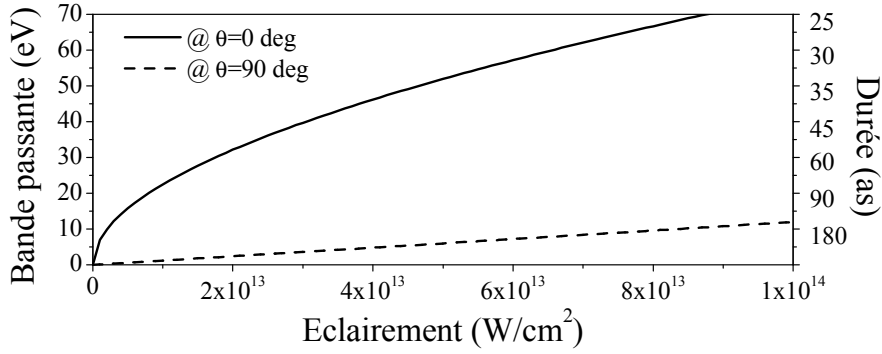
**Fig. 5.2:** Effet de la modulation de phase sur le spectre d'électrons, pour différentes synchronisations. Les gaussiennes noires représentent le profil temporel de l'impulsion attoseconde, et les grises les spectres d'électrons. (a) Phase  $\Phi(t)$  et énergie  $W(t)$  pour  $\theta = 0$ ,  $W = 100$  eV,  $I = 5 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> et  $\lambda = 800$  nm. (b) Mêmes conditions sauf  $I = 5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Le spectre gris foncé représente le spectre d'électrons en l'absence de champ laser.

(i) L'impulsion attoseconde est synchronisée avec un zéro du champ laser (figure 5.2(a)). Dans ce cas, la modulation de phase est quasi-linéaire au voisinage de l'impulsion. La variation d'énergie induite  $\delta W$  est stationnaire, et est donc approximativement la même pour toute l'impulsion. Le spectre est décalé mais non distordu. Ce décalage peut être vers les hautes ou les basses énergies, selon que l'on se trouve respectivement sur un front descendant ou montant du champ infrarouge.

(ii) L'impulsion attoseconde est synchronisée avec un maximum du champ laser (figure 5.2(b)). La phase est approximativement quadratique et le décalage en énergie du paquet est linéaire en temps. Les différentes composantes temporelles du paquet d'électrons subissent donc des décalages spectraux différents.

### 5.2.2 Bande passante du modulateur de phase

Dans le domaine optique, des modulateurs de phase temporelle, basés par exemple sur l'emploi d'effets électro-optiques, sont couramment utilisés pour réaliser la caractérisation complète d'impulsions. Une condition nécessaire à la transposition de cette idée au domaine attoseconde *via* la photoionisation est que le modulateur de phase dont nous disposons ait une bande passante suffisamment élevée, c'est à dire qu'il soit suffisamment rapide. Pour quantifier cette condition, nous devons comparer la largeur de bande de la modulation de phase à celle de l'impulsion à mesurer. La largeur de bande pour



**Fig. 5.3:** Bande passante du modulateur de phase en fonction de l'éclairement laser, pour deux angles d'observation.

$\phi(t)$  est la largeur de sa transformée de Fourier. Qualitativement, c'est aussi le décalage spectral maximal  $\delta W_{max}$  que cette phase peut induire, qui est donné par  $|\partial\phi/\partial t|_{max}$ .

Nous représentons cette bande passante en fonction de l'éclairement laser sur la figure 5.3, pour deux angles d'observation :  $0^\circ$  et  $90^\circ$ . Nous avons déjà noté que la profondeur de modulation à un éclairement donné était bien plus importante à  $0^\circ$  qu'à  $90^\circ$ , et le comportement de la bande passante est similaire. Les largeurs calculées sont de l'ordre de l'électron-volt à  $90^\circ$  et peuvent atteindre quelques dizaines d'eV à  $\theta = 0$ . Augmenter l'éclairement laser permet d'améliorer la résolution temporelle du modulateur de phase, mais il existe une limite : s'il est trop intense, l'infrarouge peut ioniser l'atome et provoquer une déplétion du niveau atomique fondamental ainsi que l'apparition d'électrons supplémentaires sur les spectres.

Afin de comparer la largeur de bande de la modulation de phase à la durée des impulsions qu'elle peut permettre de mesurer, nous calculons la durée d'une impulsion lumineuse limitée par transformée de Fourier correspondant à chaque largeur. Il est possible d'atteindre le domaine attoseconde avec des éclairissements raisonnables, ce qui montre que le champ infrarouge est bien adapté à la métrologie d'impulsions attosecondes par modulation de phase. Nous illustrons brièvement deux méthodes d'utilisation de ce modulateur qui ont été proposées, puis détaillons la méthode FROGCRAV.

### 5.2.3 Caméra à balayage de fente attoseconde

Les caméras à balayage de fente sont couramment utilisées pour caractériser des impulsions UVX picosecondes. Leur principe de fonctionnement repose sur la conversion d'une impulsion optique en un paquet d'électrons. Ces électrons sont ensuite accélérés transversalement par un champ électrique augmentant linéairement au cours du temps. Ainsi, le début du paquet d'électrons subit une faible déviation tandis que la fin voit un

champ plus important et est fortement déviée. On parvient de cette manière à séparer *spatialement* différentes tranches temporelles de l'impulsion. La mesure de l'étendue spatiale du paquet d'électrons accélérés donne donc accès à la durée de l'impulsion. La résolution d'un tel système est limitée par la rapidité de balayage du champ électrique, et peut être sub-picoseconde dans les systèmes les plus performants.

Lors de l'étude de l'effet du modulateur de phase sur le paquet d'électrons, nous avons vu que si la modulation de phase est quadratique, c'est à dire si l'impulsion attoseconde est synchronisée avec un extremum du champ électrique, il est possible de séparer *spectralement* différentes tranches temporelles de l'impulsion (figure 5.2(b)). Cette idée est à la base de la méthode de caméra à balayage de fente attoseconde, proposée par Eric Constant (1997) et développée par Itatani et al. (2002). Il s'agit de mesurer successivement les spectres du paquet électronique modulé par un maximum et un minimum du champ. Si l'impulsion attoseconde est limitée par transformée de Fourier, l'ajout d'une phase quadratique positive ou négative produit un élargissement identique du spectre. En revanche, si l'impulsion possède déjà une phase quadratique, la modulation de phase va dans un cas s'y ajouter, élargissant le spectre, et dans l'autre la compenser, rétrécissant le spectre. On peut alors déduire des deux largeurs spectrales la dérive de fréquence de l'impulsion attoseconde, c'est à dire la valeur de son terme de phase quadratique.

Cette méthode est valable pour la caractérisation d'impulsions attosecondes uniques, de durée courte devant le cycle optique. La vitesse de balayage de la caméra est donnée par l'amplitude du champ infrarouge. La valeur maximale qu'il peut avoir sans produire de forte ionisation de l'atome mène à une résolution évaluée à 70 as. Elle a été implémentée expérimentalement avec succès par Kienberger et al. (2004) et a permis de caractériser des impulsions de 250 as limitées par transformée de Fourier. Des impulsions possédant une dérive de fréquence non nulle n'ont jamais été observées par cette équipe, ce qui ne permet pas de démontrer complètement le potentiel de la méthode.

#### 5.2.4 SPIDER attoseconde

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, SPIDER repose sur la création de deux répliques de l'impulsion à caractériser, décalées spectralement et temporellement (Iaconis and Walmsley, 1998). En analysant l'effet d'une modulation de phase temporelle sur le paquet d'électrons, nous avons vu qu'il était possible d'effectuer un décalage de son spectre *via* une modulation de phase linéaire (figure 5.2(a)). L'idée du SPIDER attoseconde proposée par Fabien Quéré et al. (2003) est d'utiliser le champ infrarouge pour effectuer une mesure SPIDER. On suppose que l'on dispose de deux répliques de l'impulsion UVX à caractériser, décalées temporellement d'un demi cycle optique. En synchronisant ce couple d'impulsion avec les zéros du champ infrarouge on induit un



décalage spectral des paquets électroniques de chaque réplique, de signes opposés (figure 5.2(a)). On dispose finalement de deux répliques décalées spectralement et temporellement, dont le spectre comporte l'information sur la phase spectrale de l'impulsion attoseconde.

Cette technique peut permettre la caractérisation d'impulsions uniques de durée brève devant le cycle optique. La principale difficulté pour la mettre en place expérimentalement est la réalisation de deux répliques temporelles d'une impulsion UVX. La méthode que nous avons employée dans notre SPIDER Harmonique (Chapitre 2), consistant à générer les impulsions UVX à partir de répliques temporelles de l'impulsion infrarouge, n'est pas compatible avec un délai si court entre les impulsions. Il faut donc travailler directement sur les champs UVX, ce qui est techniquement difficile.

### 5.3 Principe de la méthode FROGCRA

Les méthodes de mesure que nous avons présentées dans le paragraphe précédent permettent la caractérisation d'impulsions attosecondes uniques, de durée brève devant le cycle optique. Cependant, la génération de telles impulsions représente un cas extrême de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, et dans la plupart des cas, ces impulsions seront précédées et suivies de quelques répliques. L'influence de ces répliques peut être négligeable dans le cadre d'expériences pompe-sonde si elles sont suffisamment faibles. Il est donc essentiel de les caractériser.

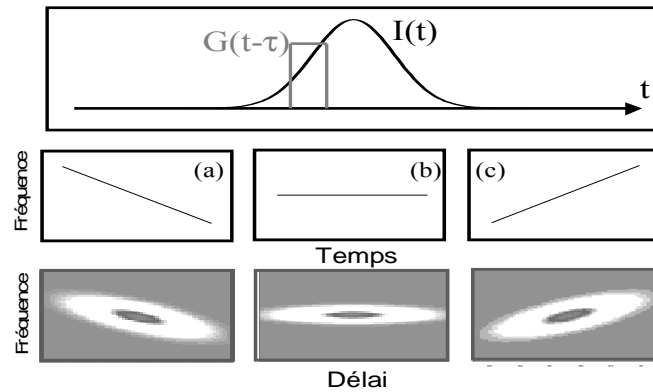
FROGCRA est une méthode simple de caractérisation d'impulsions attosecondes *quelconques*. Elle permet de caractériser des impulsions uniques, des trains, avec des phases arbitrairement complexes, de manière *systématique*. Elle repose sur la transposition de la technique FROG, que nous présentons dans le premier paragraphe.

#### 5.3.1 La technique FROG

FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*, découpage optique résolu en fréquence) est une méthode de mesure d'impulsions très répandue dans les domaines visible et infrarouge (Trebbino, 2000). Elle consiste à décomposer l'impulsion à mesurer en tranches temporelles grâce à une porte temporelle  $G(t)$ , et à mesurer le spectre de chaque tranche. On obtient ainsi un tableau de données à deux dimensions, appelé spectrogramme ou trace FROG, qui s'écrit :

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2 \quad (5.6)$$

où  $E(t)$  est le champ électrique de l'impulsion inconnue et  $\tau$  le délai variable entre la porte et le champ.



**Fig. 5.4:** Utilisation d'une porte  $G(t)$  en créneau pour la mesure FROG d'une impulsion gaussienne. Les trois spectrogrammes du bas correspondent à des phases plate (b) et quadratiques de signes opposés (a) et (c). D'après [Trebino \(2000\)](#).

Dans le cas où  $G(t)$  est une fonction simple comme un créneau (figure 5.4), on peut avoir une lecture simple du spectrogramme. Nous représentons sur la figure les spectrogrammes d'une impulsion gaussienne obtenus avec une porte rectangulaire de durée inférieure à celle de l'impulsion initiale. Nous considérons trois cas : (a) l'impulsion a une dérive de fréquence linéaire négative ; (b) elle est limitée par transformée de Fourier ; et (c) elle a une dérive de fréquence positive. L'effet de la dérive de fréquence est très clairement visible sur les spectrogrammes. A chaque délai, la porte découpe une certaine tranche de l'impulsion, dont on analyse le spectre. Lorsque l'impulsion a une dérive de fréquence positive, la fréquence instantanée est décalée vers le rouge sur le front montant, et vers le bleu sur le front descendant. Ainsi les tranches découpées sur le front montant ont un spectre décalé vers les basses fréquences par rapport au centre de l'impulsion. Il apparait une inclinaison de la trace FROG qui est caractéristique de la non synchronisation des différentes composantes fréquentielles de l'impulsion.

La condition sur la porte à utiliser pour réaliser une mesure FROG est qu'elle ait une bande passante suffisamment importante, comparable à la largeur spectrale de l'impulsion à mesurer. La solution la plus couramment utilisée consiste à utiliser l'impulsion elle-même comme porte, associée à un milieu non-linéaire. Cependant la porte peut être tout à fait indépendante du champ à caractériser, pourvu qu'elle soit assez rapide.

A partir d'un spectrogramme donné par l'équation 5.6, il est possible de reconstruire complètement les fonctions  $E(t)$  et  $G(t)$ , en amplitude et en phase. Ainsi, une trace FROG mesurée fournit à la fois l'impulsion et la porte, et l'on peut par conséquent utiliser comme porte dans les mesures FROG une fonction inconnue. On remarque d'ailleurs la symétrie de l'équation 5.6, qui montre que les deux fonctions  $E$  et  $G$  sont équivalentes dans le problème de reconstruction. Il existe différents algorithmes qui permettent de reconstruire la porte et le champ à partir du spectrogramme. Nous avons

utilisé le puissant algorithme PCGPA (Principal Component Generalized Projection Algorithm) (Kane, 1999). Il est basé sur des produits de matrices, des réarrangements de vecteurs et des transformées de Fourier rapides. Il est rapide d'exécution et simple à programmer.

FROG présente un certain nombre d'avantages par rapport aux autres méthodes existant dans le visible. Tout d'abord, elle fournit une reconstruction complète en amplitude et en phase de l'impulsion, ce qui la rend bien plus intéressante que les mesures d'auto-corrélations. De plus, elle est robuste au bruit. En effet, l'information est très redondante dans une trace FROG : l'algorithme dispose de  $N^2$  points et doit retrouver  $2N$  amplitudes et  $2N$  phases. Enfin, FROG permet la mesure de tout type d'impulsion, même si le spectre comporte des zones d'amplitude nulle. Ce point constitue un avantage majeur par rapport au SPIDER, puisque FROG peut mesurer des trains d'impulsions. L'inconvénient principal de FROG est la difficulté de réaliser des mesures monocoup, puisqu'il faut *a priori* accumuler plusieurs spectres à des délais différents pour réaliser un spectrogramme. Ce problème peut être résolu dans le domaine optique en utilisant un spectromètre imageur pour réaliser des mesures FROG monocoup (Trebbino, 2000).

### 5.3.2 Mesures FROG d'impulsions attosecondes : FROGCRA B

Le principe des mesures FROG se comprend aisément en considérant comme sur la figure 5.4 le cas d'une porte d'amplitude, c'est à dire une fonction  $G(t)$  réelle. L'utilisation de portes de phase est néanmoins possible, puisque l'algorithme de reconstruction travaille sur des grandeurs complexes. Des mesures reposant sur la modulation de phase ont été effectuées en optique (Thomson et al., 1998). Dans le domaine attoseconde, utiliser l'impulsion à mesurer elle-même comme porte n'est pas aisé, car il faut alors un effet non-linéaire pour réaliser le produit  $E(t)E(t - \tau)$  dont on doit mesurer le spectre. En revanche, en convertissant l'impulsion UVX en paquet d'ondes électronique, nous pouvons utiliser le champ infrarouge comme modulateur de phase ultrarapide.

En comparant l'équation régissant la photoionisation UVX en présence d'un champ infrarouge (équation 5.3) à la forme générale d'une trace FROG (équation 5.6), nous remarquons une grande similitude. Le terme  $e^{i\phi(t)}$  peut être vu comme une porte de phase  $G(t)$  agissant sur le paquet d'électrons attosecondes :

$$S(W, \tau) = |a_{\mathbf{v}}(\tau)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) \mathbf{d}_{\mathbf{v}+\mathbf{A}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{iWt} \right|^2 \quad (5.7)$$

Ainsi, l'ensemble des spectres de photoélectrons produits par une impulsion attoseconde en présence d'un champ infrarouge, à délai variable, constitue une trace FROG. En l'injectant dans un algorithme PCGPA, on doit retrouver l'impulsion UVX et le champ infrarouge. Nous avons baptisé cette méthode de FROG pour la reconstruction d'impulsions attosecondes quelconques FROGCRA B (*Frequency Resolved Optical Gating for*



**Fig. 5.5:** Le Frog Crab, ou Spanner Crab

*Complete Reconstruction of Attosecond Bursts*, [Mairesse and Quere \(2005\)](#), figure 5.5), ajoutant ainsi une espèce à la zoologie des méthodes de caractérisations d'impulsions lumineuses (spider, sea-spider, frog, tree-frog, tadpole, grenouille ...).

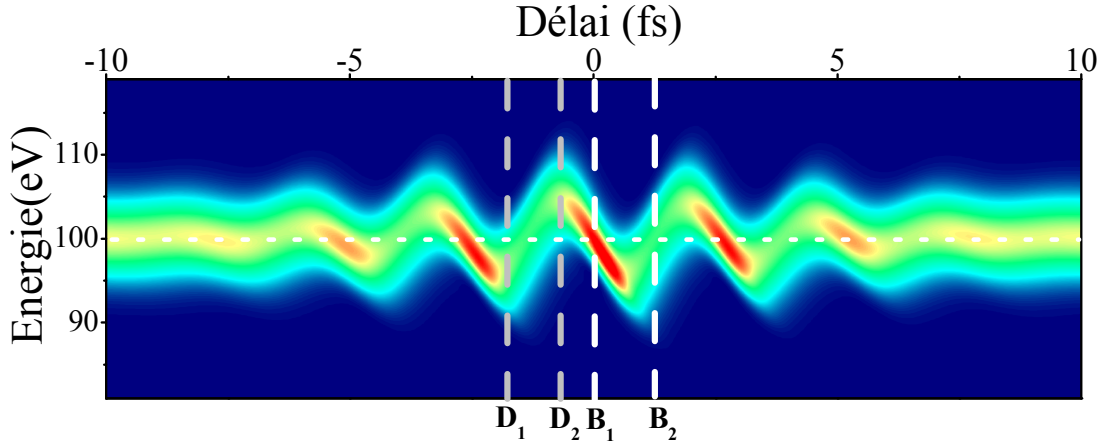
Comme nous l'avons déjà noté, la modulation de phase  $\phi(t)$  induite par le champ laser dépend de l'énergie finale de l'électron. Une telle dépendance n'est pas prise en compte par l'algorithme de reconstruction, et peut introduire des erreurs systématiques. Il est donc essentiel d'effectuer des simulations détaillées pour les quantifier.

Nous avons développé un programme sous Labview pour calculer des spectres de photoélectrons en présence d'un champ infrarouge à partir de l'équation 5.5. Nous avons également programmé un algorithme PCGPA afin de tester la reconstruction des impulsions UVX et infrarouge dans différents cas.

## 5.4 Caractérisation d'une impulsion attoseconde unique

Nous considérons comme premier exemple de FROGCRAb le cas d'une impulsion attoseconde unique, possédant des termes de phase spectrale d'ordres 2 et 3. L'impulsion a une durée de 315 as, la limite de Fourier imposée par sa largeur spectrale étant de 250 as. Afin d'être proche de conditions expérimentales réalistes, nous calculons une trace moyenne sur un angle de détection de  $\pm 30^\circ$  autour de  $\theta = 0$ , par sommation des traces calculées aux différents angles. La trace obtenue n'est donc pas une trace FROG "pure", mais comporte deux source d'erreurs systématiques : l'acceptance angulaire, et la dépendance en énergie de la modulation de phase.

L'allure de la trace obtenue est facilement interprétable, à la lumière de l'étude de l'effet de la modulation de phase que nous avons effectuée précédemment. Lorsque l'impulsion attoseconde est synchronisée avec un zéro du champ, le spectre de photoélectrons est décalé vers les hautes ou les basses énergies, selon que le champ est sur un front montant ou descendant (points  $D_1$  et  $D_2$ ). Lorsque l'impulsion est sur un maximum du champ, l'effet de la phase quadratique de la modulation s'ajoute à celui de la dérive de fréquence de l'impulsion attoseconde, et produit un élargissement spectral. Quand elle est sur

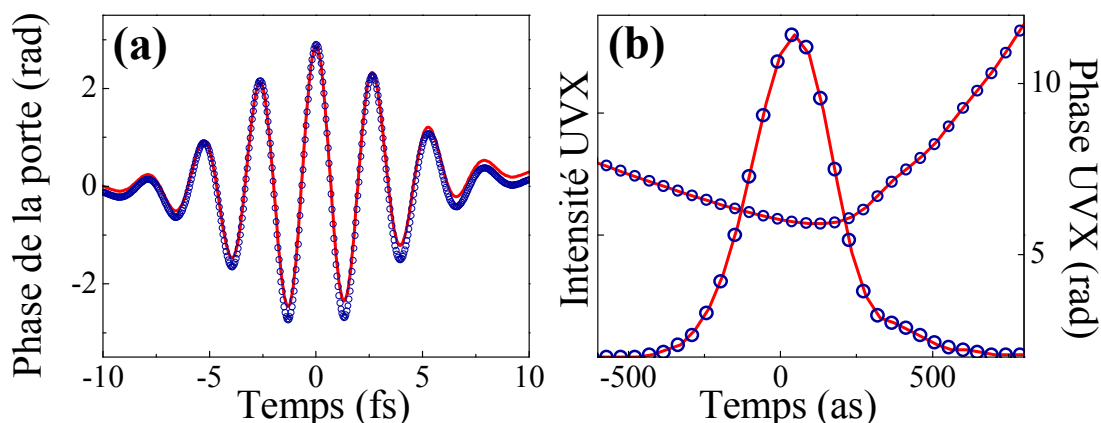


**Fig. 5.6:** Trace FROGCRAV d'une impulsion attoseconde unique de 315 as à 100 eV obtenue avec une impulsion infrarouge de 6 fs,  $5 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>, à 800 nm, et une acceptance angulaire de  $\pm 30^\circ$  autour de  $\theta = 0$ .

un minimum du champ, le terme quadratique de modulation de phase est de signe opposé, et compense partiellement la dérive de fréquence de l'impulsion attoseconde, produisant un rétrécissement du spectre de photoélectrons. L'effet du champ infrarouge aux points  $B_1$  et  $B_2$  est donc de réaliser un balayage temps-énergie, comme une caméra à balayage de fente attoseconde. Ainsi, la dissymétrie observée sur la trace entre les points  $B_1$  et  $B_2$  est caractéristique de l'existence d'une dérive de fréquence de l'impulsion attoseconde. La mesure CRAB est cependant plus puissante qu'une mesure de type caméra à balayage de fente attoseconde, puisqu'elle permet de déterminer la phase spectrale à tout ordre, et utilise l'ensemble des spectres mesurés, et non simplement deux spectres. Elle est donc plus robuste au bruit.

L'algorithme PCGPA a besoin d'une devinette initiale de porte et de champ UVX pour démarrer. Nous définissons un champ UVX initial gaussien de largeur spectrale semblable à celle présente aux extrémités de la trace CRAB simulée. Nous prenons une phase spectrale nulle. Expérimentalement, il serait possible de choisir une meilleure devinette pour le champ UVX, en injectant un spectre UVX mesuré en l'absence de champ laser. Concernant la porte, nous avons remarqué au cours de nos diverses simulations qu'il était préférable de partir d'une phase nulle, c'est à dire que l'on considère dans la devinette initiale qu'il n'y a pas de champ laser.

Lorsque l'algorithme est lancé, l'opération qu'il effectue lors de la première itération consiste à remplacer le spectre de la devinette par le spectre de l'impulsion UVX non perturbée, obtenu sur les bords de la trace CRAB. Ensuite, l'algorithme construit peu à peu l'oscillation du champ infrarouge dans la phase de la porte, ce qui a pour effet de donner naissance à des oscillations en position du spectre de photoélectron lorsque le délai varie. Une fois la porte grossièrement reconstruite, ce qui prend quelques di-



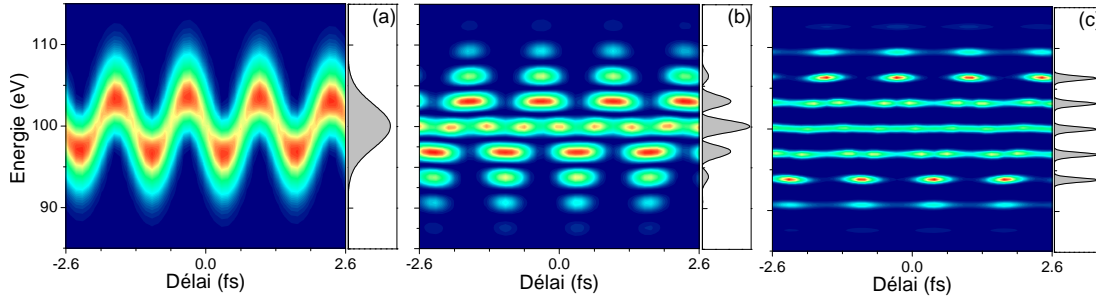
**Fig. 5.7:** Résultats après 100 itérations l'algorithme PCGPA pour la trace de la figure 5.6. Porte de phase (a) et impulsion attoseconde (b) initiales (trait continu) et reconstruites (cercles)

zaines d'itérations, l'algorithme affine la ressemblance entre la trace CRAB reconstruite et celle simulée en jouant sur la phase de l'impulsion UVX, et finement sur la porte. Un film présentant la convergence de l'algorithme peut être vu sur <http://www-drecam.cea.fr/spam/themes/atto>.

Au bout de 100 itérations on obtient les profils de champ UVX et de phase représentés sur la figure 5.7(a-b). L'accord sur l'amplitude et la phase de l'impulsion attoseconde est excellent. Concernant la porte, il existe une différence notable. Nous avons vérifié que cette différence existait même lorsque l'on effectuait la détection à un angle  $\theta$  bien défini, et ce n'est donc pas l'acceptance angulaire qui est en cause. Il est possible que l'effet observé soit dû à la dépendance de la modulation de phase en énergie. Nous pouvons tout de même conclure de cette première étude que la méthode FROGCRA B permet de reconstruire l'impulsion attoseconde de manière simple et très rapide, et avec une excellente précision même lorsque l'angle de collection dans la mesure est important.

## 5.5 Train d'impulsions attosecondes

Nous nous intéressons à présent à la caractérisation de trains d'impulsions attosecondes par la méthode FROGCRA B. Nous avons déjà présenté au chapitre 3 une méthode de mesure de tels trains : RABBITT (Muller, 2002). Cependant, cette mesure des phases relatives des harmoniques fournit une impulsion moyenne du train mais pas son enveloppe. Pour obtenir le profil temporel complet, il faudrait ajouter à cette mesure une détermination des phases individuelles des harmoniques, comme le SPIDER UVX



**Fig. 5.8:** (a) Spectrogramme d'une impulsion unique de 250 as, avec une porte à  $2\omega_0$  de 7 fs et  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. (b) Spectrogramme de deux répliques identiques, séparées de  $T_L/2$ . (c) Spectrogramme d'un groupe de 5 harmoniques identiques, constituant un train d'impulsions de 250 as. Les panneaux à droite de chaque spectrogramme présentent les spectres des champs UVX non perturbés.

du chapitre 2. FROGCRAb fournit en même temps les informations sur les phases individuelles et les phases relatives, permettant une reconstruction complète du train. Avant de démontrer cela, nous analysons l'effet de la porte de phase sur un train d'impulsions attosecondes. Nous nous plaçons dans le cas d'une détection à  $\theta = 0^\circ$ . Le terme dominant de la modulation de phase  $\Phi(t)$  est donc  $\Phi_2(t)$ , c'est à dire un terme oscillant à la fréquence du champ d'habillage.

### 5.5.1 De l'impulsion attoseconde unique au train d'impulsions

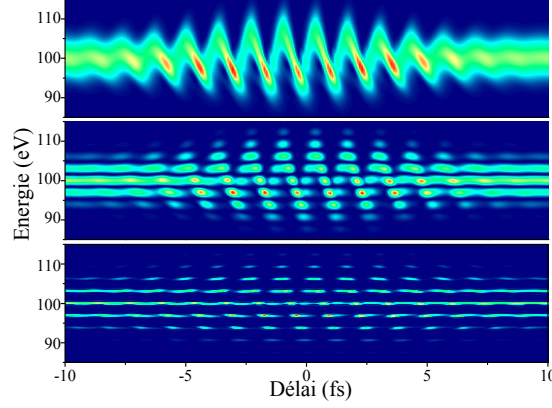
L'étude de FROGCRAb sur une impulsion attoseconde unique a montré que l'information sur la structure temporelle de l'impulsion était principalement encodée sur les spectres d'électrons par l'effet de type "caméra à balayage de fente" du modulateur de phase. Afin de comprendre comment ce modulateur agit sur un train d'impulsions attosecondes, nous construisons un tel train en ajoutant progressivement des répliques d'une impulsion unique de départ, et analysons les traces CRAB obtenues.

#### 5.5.1.1 Habillage avec un champ à $2\omega_0$

Les impulsions attosecondes d'un train produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé sur cible gazeuse sont séparées d'une demi période laser. En utilisant un champ électrique à  $2\omega_0$  pour effectuer la modulation de phase, on obtient une porte  $G(t)$  qui a la même périodicité que le train attoseconde. Cela signifie que deux impulsions successives du train subissent la même modulation de phase, à la variation de l'enveloppe du laser près.

La figure 5.8(a) présente le spectrogramme obtenu pour une impulsion de 250 as, limitée





**Fig. 5.9:** (a) Spectrogramme d'une impulsion unique de 315 as, avec une porte à  $2\omega_0$  de 7 fs et  $4 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. (b) Spectrogramme de 2, et (c) 8 répliques identiques, séparées de  $T_0/2$ .

par transformée de Fourier, et calculé avec une impulsion porte de 7 fs et  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> à 400 nm. L'effet de la porte est similaire à celui présenté au paragraphe précédent : lorsque le délai est nul, l'impulsion est synchronisée avec un maximum du champ, et la porte élargit le spectre ; au délai  $\tau = T_0/8$  ( $T_0 \approx 2.6$  fs), l'impulsion voit un zéro du champ, et le spectre est décalé. Le fait que les spectres de photoélectrons soient identiques à  $\tau = 0$  et  $\tau = T_0/4$  montre que la phase spectrale de l'impulsion UVX est plate.

Nous ajoutons à présent une seconde impulsion attoseconde au champ UVX, identique à la première et décalée temporellement de  $T_0/2$  (soit 1.3 fs). Le spectre UVX présente alors des cannelures, signature de l'interférence spectrale entre les deux répliques (à droite de la figure 5.8(b)). L'interfrange est  $2\pi/(T_0/2) = 2\omega_0$ , c'est-à-dire approximativement 3.1 eV. Lorsque l'on ajoute la porte de phase à  $2\omega_0$ , les deux impulsions subissent la même modulation de phase. Par conséquent, on peut considérer que le spectre de photoélectron résultant est produit par deux paquets électroniques décalés temporellement, et *identiques*. Le spectre de cet ensemble de paquets est celui d'un paquet, modulé par des interférences spectrales à  $2\omega_0$ . La figure 5.8(b) présente le spectrogramme obtenu dans ces conditions. Il est identique à celui de la figure 5.8(a), mais est cannelé par les interférences spectrales.

L'effet d'ajout de répliques supplémentaires au champ UVX est le rétrécissement des franges d'interférences spectrales sur le spectrogramme. Nous représentons sur la figure 5.8(c) la trace obtenue à partir non plus de répliques identiques, mais d'un train d'impulsions de 250 as avec une enveloppe gaussienne de 3 fs. Le spectre de ce train est constitué de 5 harmoniques séparées de  $2\omega_0$ , et peut être vu comme la figure d'interférences spectrales de l'ensemble des impulsions attosecondes du train. Le spectrogramme



présente comme sur la figure (a) des délais auxquels les spectres d'électrons sont décalés, mais avec une discrétisation plus importante que sur la figure (b). L'information sur la durée des impulsions attosecondes dans cette trace CRAB est donc encodée de la même manière que pour une impulsion attoseconde unique, c'est à dire principalement par un effet de type "caméra à balayage de fente attoseconde". La figure 5.9 présente des traces obtenues dans des conditions similaires mais avec les impulsions attosecondes utilisées précédemment à la figure 5.6, c'est à dire possédant une phase spectrale d'ordre 3. Sur la trace discrétisée correspondant à 8 répliques, on continue de voir l'effet de "balayage".

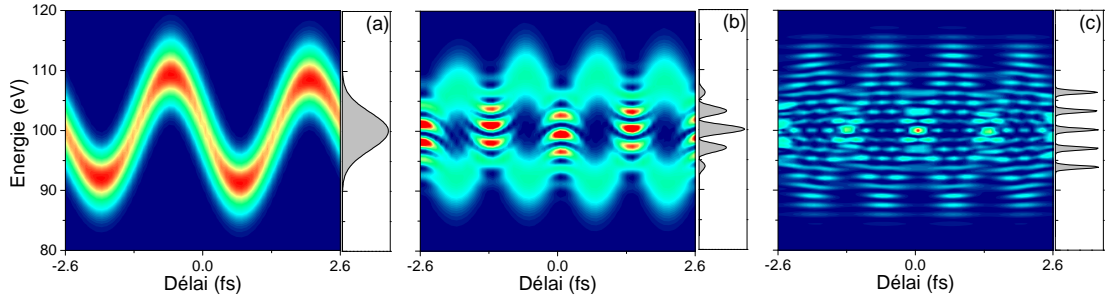
Il est également possible d'interpréter l'effet de la porte en termes de photons. Les harmoniques sont séparées de  $2\omega_0$ , c'est à dire d'un photon du champ d'habillage. Lors de l'ionisation des atomes, il peut se produire comme dans les mesures RABBITT des transitions faisant intervenir un photon harmonique et un photon à 400 nm. Ces transitions vont donc donner lieu à des transferts de population électronique entre harmoniques, ainsi qu'à la naissance de pics satellites externes de part et d'autre du spectre harmonique. Des effets d'interférences entre les différents chemins menant à la même énergie produisent des modulations de l'amplitude des harmoniques et des pics satellites lorsque le délai varie. Ces oscillations contiennent l'information sur la phase spectrale harmonique dont l'extraction "manuelle" n'est pas aisée mais que PCGPA peut retrouver. Nous avons vérifié que l'algorithme PCGPA permet de reconstruire les champs UVX et la porte avec une excellente précision dans les trois cas présentés ici.

Cette configuration de mesures CRAB où le champ d'habillage a la même périodicité que le train d'impulsions attosecondes correspond au cas de la génération d'harmoniques sur cible solide (Monot et al., 2004). Les harmoniques paires et impaires du fondamental sont produites, et le train d'impulsions attosecondes a donc la périodicité du laser générateur.

#### 5.5.1.2 Habillage avec un champ à $\omega_0$ intense : régime de balayage

Les trains d'impulsions attosecondes générés dans les gaz ont une périodicité double de celle du laser générateur. Par conséquent, deux impulsions successives du train voient des modulations de phases différentes. Nous étudions ici le cas où le laser produit un décalage significatif du spectre, c'est à dire que nous nous plaçons dans des conditions similaires à celles de la caractérisation d'une impulsion unique.

La figure 5.10(a) représente le spectrogramme obtenu avec une impulsion de 250 as et comme porte une impulsion infrarouge de 7 fs,  $2 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, à 800 nm. Lorsque l'on ajoute au champ UVX une seconde impulsion attoseconde identique, décalée d'une demi-période laser, on obtient le spectrogramme de la figure 5.10(b). Au délai  $\tau = 0$ , les impulsions attosecondes sont synchronisées avec des extrema du champ infrarouge (figure 5.11(a)). Elles voient des modulations de phase quadratiques, de signes opposés.

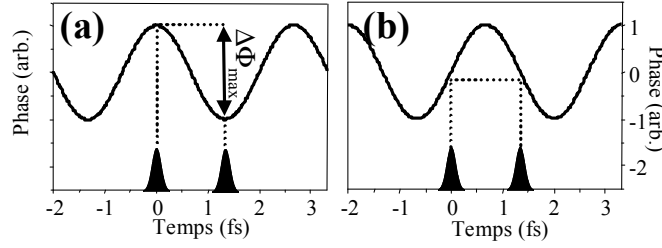


**Fig. 5.10:** (a) Spectrogram d'une impulsion unique de 250 as, avec une porte à  $\omega_0$  de 7 fs et 2 TW/cm<sup>2</sup>. (b) Spectrogramme de deux répliques identiques, séparées de  $T_0/2$ . (c) Spectrogramme d'un groupe de 5 harmoniques identiques, constituant un train d'impulsions de 250 as. Les panneaux à droite de chaque spectrogramme présentent les spectres des champs UVX non perturbés.

Le spectre de chaque impulsion est alors déformé par l'effet de balayage, et les deux spectres interfèrent dans la zone où ils se recouvrent. Dans le cas d'impulsions limitées par transformée de Fourier que nous considérons ici, les spectres d'électrons sont identiques après balayage dans un sens ou dans l'autre. On obtient donc une version cannelée de ce spectre avec un interfrange  $2\omega_0$ , que l'on retrouve aux délais multiples de  $T_0/2$ . La position des franges dans l'enveloppe spectrale est déterminée par la valeur moyenne de la phase relative entre les deux impulsions attosecondes  $\Delta\Phi$ . Cette valeur est maximale lorsque  $\tau = 0$  et varie rapidement autour de ce retard, ce qui produit un décalage des franges.

Lorsque les impulsions attosecondes sont synchronisées avec un zéro du champ infrarouge, elles subissent chacune une modulation de phase linéaire, mais de pentes opposées (figure 5.11(b)). Leurs spectres respectifs sont donc décalés dans des directions opposées, et sont séparés si le champ infrarouge est assez intense. C'est le cas quand le délai est un multiple impair de  $T_0/4$ . La figure 5.10(b) peut être vue comme la superposition cohérente de deux spectrogrammes produits par une impulsion unique (figure 5.10(a)), avec une translation d'une demi-période laser sur le délai, correspondant au décalage entre les deux impulsions UVX. Les deux spectrogrammes ainsi superposés interfèrent en produisant des franges séparées de  $2\omega_0$  dans les zones où ils se recouvrent.

Un train d'impulsions attosecondes peut être construit en dupliquant avec une périodicité  $T_0$  le motif constitué du couple d'impulsions séparées de  $T_0/2$ . Le spectrogramme correspondant est une version discrétisée du spectrogramme du couple, avec un interfrange  $\omega_0$ . Nous représentons sur la figure 5.10(c) le spectrogramme correspondant à un train d'impulsions attosecondes obtenu en superposant 5 harmoniques. Il ressemble bien à celui de la figure (b), avec des franges séparées de 1.55 eV. Cette figure peut également être interprétée en termes de photons : il apparaît entre les harmoniques



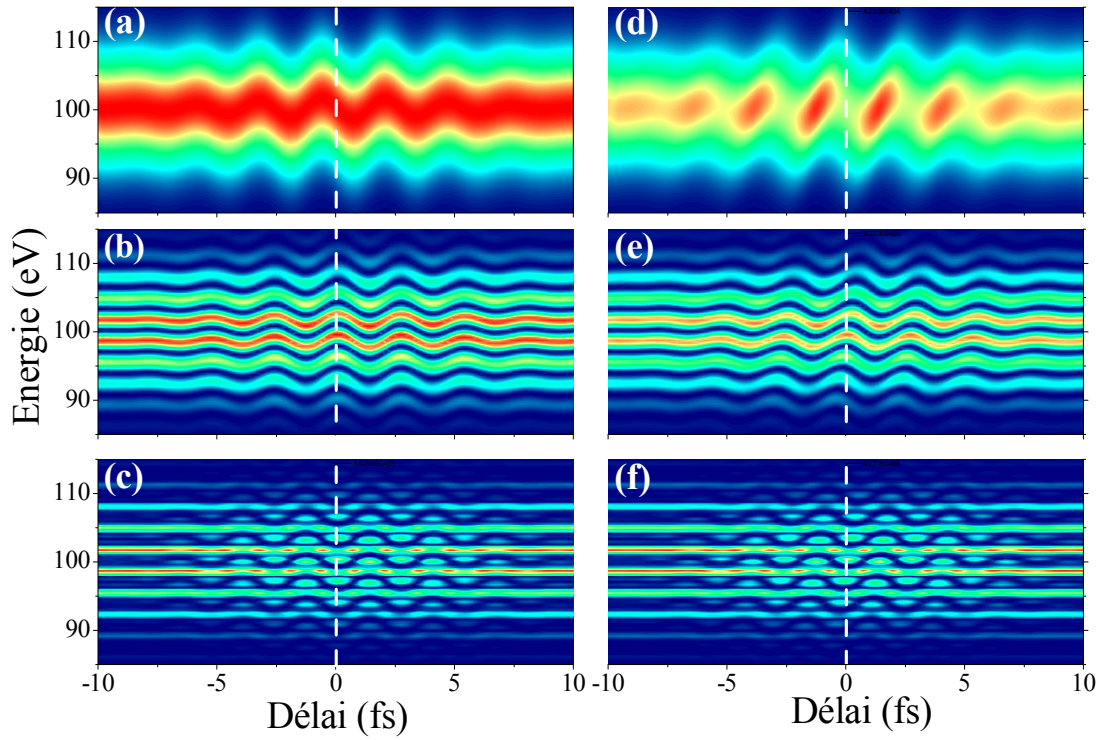
**Fig. 5.11:** Synchronisation de la modulation de phase  $\omega_0$  et d'un couple d'impulsions attosecondes. (a) Configuration de "balayage" en énergie. (b) Configuration de décalage en énergie.

des pics satellites résultants de l'ionisation à deux photons, deux couleurs, et de part et d'autre des pics satellites externes, d'ordre élevé, correspondant à l'absorption d'un photon harmonique et de plusieurs photons infrarouges. Le champ laser étant intense, à certains délais les énergies harmoniques sont quasiment vidées de leurs population au profit des satellites, ce qui correspond au décalage des spectres de chaque impulsion attoseconde. Dans cette configuration, l'information sur la structure temporelle est principalement codée par un effet de type caméra à balayage de fente, et nécessite donc un champ intense pour avoir une bonne résolution temporelle.

### 5.5.1.3 Habillage avec un champ à $\omega_0$ faible : régime interférométrique

Nous considérons dans ce paragraphe le cas de l'utilisation de champs lasers peu intenses pour la mesure CRAB de trains d'impulsions attosecondes. Plus précisément, nous nous plaçons dans le cas où le champ électrique d'habillage n'induit qu'un décalage faible devant la largeur spectrale du champ attoseconde :  $\delta W \ll \Delta W$ . Le spectrogramme d'une impulsion unique de 150 as obtenu avec un d'éclairement infrarouge de  $5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> est représenté sur la figure 5.12(a). A cet éclairement, la résolution temporelle que l'on peut avoir sur la mesure grâce à l'effet de balayage est assez médiocre (la figure 5.3 donne une résolution d'environ 200 as).

En ajoutant une réplique de l'impulsion attoseconde au champ UVX, identique et décalée temporellement d'une demi période laser, on obtient la trace CRAB de la figure 5.12(b). L'effet principal du délai sur cette trace n'est pas de décaler le spectre de photoélectrons, mais plutôt de translater les franges. Un décalage des enveloppes spectrales similaire à celui observé à plus fort éclairement sur la figure 5.10 existe toujours mais est peu visible car faible. Les cannelures sur les spectres de photoélectrons sont des franges d'interférences spectrales séparées de  $2\omega_0$  et présentes sur le spectre non perturbé. Nous avons déjà vu que leur position était déterminée par la différence de phase  $\Delta\Phi$  entre les deux répliques. Lorsque le délai est nul, les impulsions sont synchronisées avec les extrema du champ infrarouge et cette différence est maximale (figure 5.11(a)) ;



**Fig. 5.12:** (a) Spectrogrammes d'une impulsion unique de 150 as, avec une porte à  $\omega_0$  de 7 fs et  $5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>. (b) Spectrogramme de deux répliques identiques séparées de  $T_0/2$ . (c) Spectrogramme de quatre répliques identiques séparées de  $T_0/2$ . (d)-(e)-(f) : Mêmes spectrogrammes avec une impulsion attoseconde à dérive de fréquence positive.

elle est en revanche nulle quand  $\tau$  est multiple de  $T_0/2 = 1.3$  fs (figure 5.11(b)). Ainsi, les franges présentent un décalage maximal à  $\tau = 0$ , et nul quand les impulsions sont synchronisées avec les zéros du champ. Elles oscillent donc en quadrature par rapport à l'enveloppe spectrale.

La figure 5.12(c) présente le spectrogramme obtenu avec quatre répliques de l'impulsion attoseconde, ce qui revient à dupliquer les deux impulsions précédentes avec un décalage d'une période laser. On obtient une trace identique à la figure 5.12(b) discrétisée à la période  $\omega_0$  en raison de la périodicité à  $T_0$ . L'effet du faible champ infrarouge est d'induire des pics satellites entre les harmoniques. Ces pics apparaissent lorsque les impulsions attosecondes explorent les extrema du champ infrarouge, et oscillent donc à la fréquence double du laser lorsque le délai varie. Nous retrouvons à partir d'une analyse temporelle le phénomène qui est à la base des mesures RABBITT.

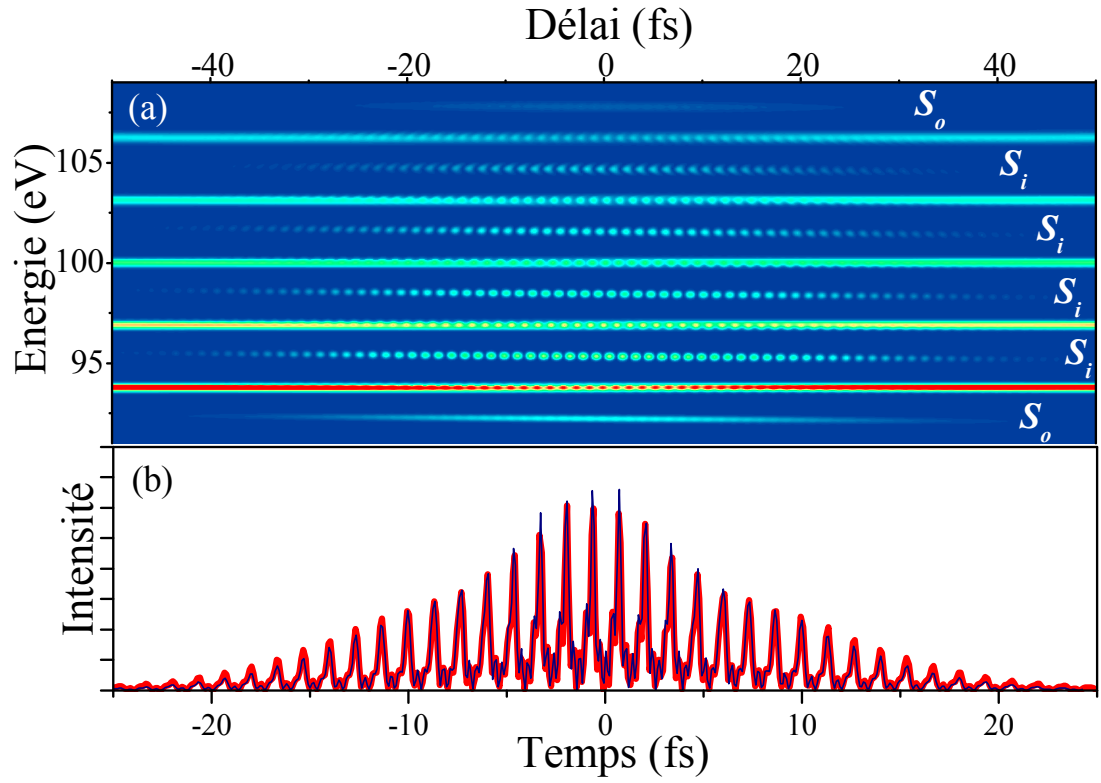
La théorie des mesures RABBITT montre que la phase de l'oscillation d'un pic satellite est liée à l'instant d'émission de l'harmonique considérée. Afin de comprendre ce résultat à la lumière de l'analyse CRAB, nous reprenons l'étude de la figure 5.12 dans le cas où les différentes composantes temporelles de l'impulsion attoseconde ne sont pas synchronisées, c'est à dire avec une impulsion à dérive de fréquence linéaire (figures 5.12(d-e-f)). Les différentes composantes du spectre étant décalées temporellement, elle n'explorent pas les extrema du champ infrarouge au même délai, et les pics satellites qui leur correspondent apparaissent à des délais différents. Plus précisément, la phase de l'oscillation d'un satellite caractérise l'instant auquel la tranche temporelle de l'impulsion ayant l'énergie correspondante explore un extremum du champ, c'est à dire l'instant d'émission de l'harmonique.

L'information sur la structure attoseconde est donc encodée dans les oscillations des pics satellites qui apparaissent entre les harmoniques en présence d'un faible champ laser. Nous qualifions ce régime d'interférométrie par opposition au régime de balayage qui a lieu à champ plus fort. La résolution de la mesure attoseconde n'est plus ici limitée par l'éclairement du champ.

#### 5.5.1.4 Caractérisation complète d'un train d'impulsions attosecondes

Les trains d'impulsions attosecondes générés par des impulsions infrarouges ont généralement une enveloppe dont la durée est de l'ordre de la dizaine de femtosecondes. Nous avons discuté au paragraphe précédent de la connexion entre CRAB et RABBITT, en analysant l'information sur la structure attoseconde du train. CRAB permet de plus d'accéder aux variations des impulsions attosecondes au cours du train, à l'échelle femtoseconde.

La figure 5.13 présente la trace CRAB d'un train d'impulsions attosecondes non iden-



**Fig. 5.13:** (a) Trace CRAB mesurée à  $\theta = 0$  d'un train de 12 fs d'impulsions attosecondes non identiques, obtenu avec une impulsion infrarouge de 30 fs, 800 nm, et  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ . La trace prend en compte une résolution du spectromètre de 100 meV. Les satellites internes et externes sont étiquetés  $S_i$  et  $S_o$ . (b) Comparaison des profils temporels exact (rouge) et reconstruit (bleu)

tiques. L'enveloppe du train a une durée de 12 fs, et les impulsions attosecondes ont une durée qui varie de 250 as au centre à 400 as sur les bords du train. Le train est construit à partir d'un groupe de 5 harmoniques de largeurs spectrales et d'amplitudes différentes, auxquelles sont affectées des phases individuelles et relatives quadratiques. La modulation de phase par le champ laser crée des satellites internes auxquels les deux harmoniques adjacentes contribuent et qui oscillent à  $2\omega_0$ , et des satellites externes continus provenant des harmoniques extrêmes. L'information sur la structure attoseconde est encodée dans les oscillations des satellites, tandis que la structure femtoseconde est déterminée par leur forme globale (étendue, inclinaison). Il est ainsi clair sur la figure que les harmoniques élevées sont plus courtes que les plus faibles.

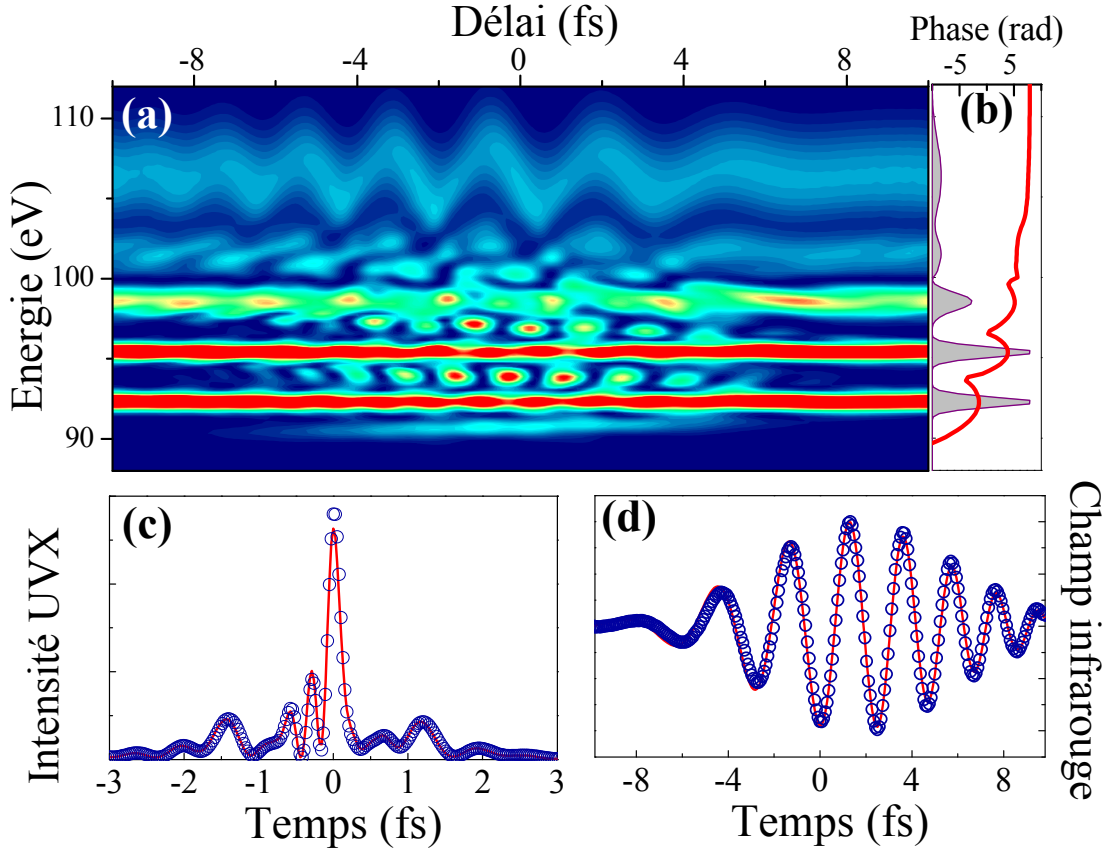
Une particularité de la mesure de train d'impulsions attosecondes est la présence sur le spectre de structures étroites (les harmoniques et les satellites) qui nécessitent une bonne résolution spectrale dans la mesure. Nous avons introduit une résolution spectrale instrumentale dans notre programme, sous la forme d'une convolution du spectre calculé par une gaussienne. Les simulations ont montré que lorsque cette résolution est trop mauvaise par rapport à la largeur spectrale des harmoniques, il existe des erreurs dans la trace reconstruite par PCGPA car il y a une contradiction entre les largeurs spectrales vues par l'algorithme et la durée d'existence des satellites.

La trace présentée sur la figure 5.13(a) est calculée en supposant une résolution du spectromètre de 100 meV, ce qui est une valeur que l'on peut atteindre expérimentalement. Comme devinette initiale nous programmons dans l'algorithme PCGPA un champ UVX défini par 5 harmoniques identiques de durée 10 fs et sans phase spectrale, et une porte de phase nulle. La convergence de l'algorithme est plus lente en raison de la complexité de la trace CRAB. Au bout de 750 itérations, on obtient le profil temporel présenté sur la figure 5.13(b). Il est très proche du champ attoseconde exact, mais l'effet de la résolution du spectromètre est visible : le train retrouvé est légèrement plus court que le train de départ. Dans ce cas cependant la différence est faible. Des simulations en fonction de la largeur spectrale des harmoniques montrent qu'une résolution de 100 meV impose une borne supérieure de 8 fs sur la limite de Fourier des harmoniques. En prenant en compte la dérive de fréquence harmonique mesurée au chapitre 2, cela signifie que l'on pourra typiquement mesurer des trains de durée inférieure à 15-20 fs.

## 5.6 Impulsion complexe

FROGCRA B permet de mesurer des impulsions attosecondes uniques grâce à un effet de "balayage" et des trains d'impulsions attosecondes grâce à des effets "interférométriques". Nous considérons dans ce dernier paragraphe le cas hybride d'une impulsion attoseconde entourée de pics secondaires.





**Fig. 5.14:** (a) Trace CRAB mesurée à  $\theta = 0$  d'un champ attoseconde complexe, dont le spectre (courbe grise) et la phase spectrale (ligne rouge) sont présentés en (b). (c)-(d) : comparaison des profils temporels exacts (ligne) et retrouvés (cercles) après 300 itérations de PCGPA.

Nous construisons un champ attoseconde à partir du spectre présenté sur la figure 5.14(b), constitué d'harmoniques discrètes d'amplitudes décroissantes et séparées de 3.1 eV, et d'une coupure continue. Les phases spectrales relatives et individuelles des harmoniques sont quadratiques et deviennent constantes dans la coupure. Ce champ est une représentation réaliste de ce que l'on obtiendrait en filtrant la fin du plateau et la coupure du rayonnement généré par une impulsion infrarouge de l'ordre de 7 fs (Baltuska et al., 2003). Temporellement, il est constitué d'une impulsion attoseconde centrale, entourée de pics secondaires plus longs et plus faibles. Le profil temporel de ce champ est très irrégulier (figure 5.14(c)). Nous utilisons pour la mesure une impulsion infrarouge de 7 fs et  $5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, qui possède une dérive de fréquence. Le but est de démontrer que la méthode FROGCRAB fonctionne même avec une impulsion porte non limitée par transformée de Fourier.

Le spectrogramme obtenu à  $\theta = 0$  est présenté sur la figure 5.14(a). On peut identifier



trois zones sur la trace :

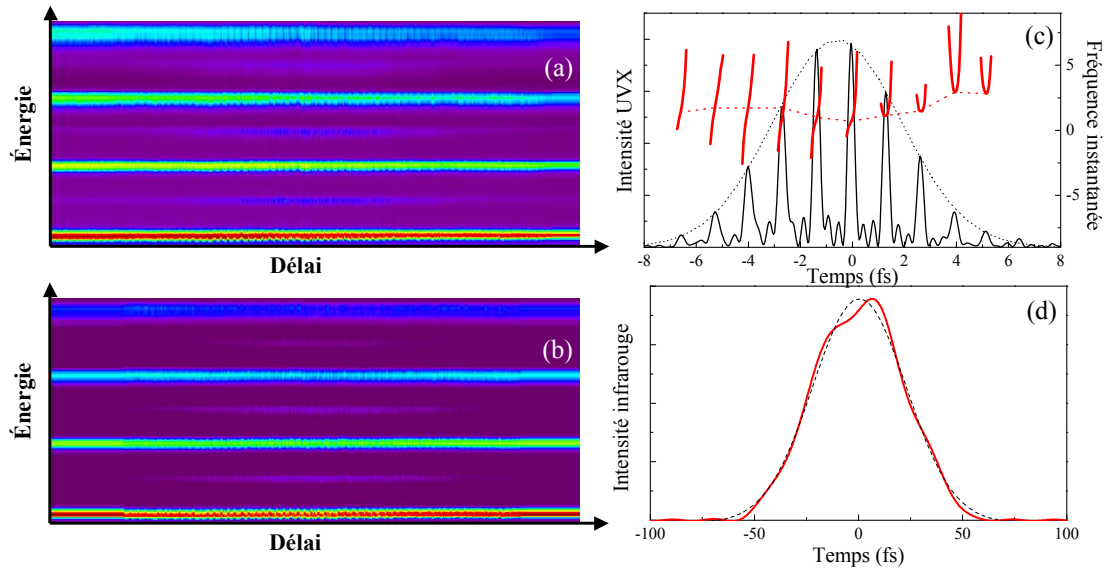
(i) Dans la partie de plus faible énergie, les harmoniques discrètes donnent naissance à des pics satellites en présence du champ infrarouge. La situation est similaire à celle de la figure 5.13.

(ii) dans la "coupure", c'est à dire la partie la plus énergétique du spectre, l'effet du champ infrarouge est d'induire un décalage ou un balayage du spectre, selon le délai, ce qui est analogue au cas de la caractérisation d'une impulsion unique (figure 5.6)

(iii) Entre les deux zones précédentes, il y a une zone de transition dont la structure ne peut être interprétée simplement mais que CRAB permet de caractériser.

L'algorithme PCGPA donne après 300 itérations le profil temporel présenté sur la figure 5.14(c). L'accord avec le champ initial est remarquable, ce qui montre que CRAB permet la caractérisation d'impulsions complexes avec une excellente précision. L'algorithme retrouve également la porte utilisée dans la mesure. A partir du profil de  $\Phi(t)$  il est possible de reconstruire approximativement le champ infrarouge. En effet, autour de  $\theta = 0$ , on peut en général négliger le terme d'ordre 2 en  $\mathbf{A}(t)$  dans l'équation 5.5 donnant l'expression de la modulation de phase. On peut alors dériver deux fois l'équation obtenue et en déduire  $\mathbf{v} \cdot \mathbf{E}_L(t) \approx -\partial^2 \phi / \partial t^2$ . En négligeant la variation de  $\mathbf{v}$  sur la largeur du spectre, on peut obtenir  $\mathbf{E}_L(t)$  par intégration. L'accord entre le champ infrarouge retrouvé et le champ initial est très bon (figure 5.14(d)), ce qui démontre la possibilité de réaliser des mesures FROGCRA même avec des champs infrarouges ayant une dérive de fréquence.

La capacité de FROGCRA à mesurer à la fois l'impulsion UVX et le champ infrarouge peut être interprétée en termes de double mesure : le champ infrarouge permet de déterminer la structure temporelle de l'impulsion attoseconde par des effets de modulation de phase, et l'impulsion attoseconde réalise un échantillonnage du champ infrarouge, en découpant des tranches qui sont mesurées. Ces deux points de vue ont été adoptés successivement par l'équipe de Vienne pour publier deux articles basés sur la même mesure : une détermination de la structure temporelle d'une impulsion attoseconde basée sur la connaissance du champ infrarouge d'une part (Kienberger et al., 2004), et une mesure du champ infrarouge reposant sur la connaissance de l'impulsion attoseconde d'autre part (Goulielmakis et al., 2004). Nous montrons ici l'unicité du problème, et proposons une méthode qui permet de mesurer à la fois les deux champs UVX et infrarouge.



**Fig. 5.15:** Mesure d'un train d'impulsions attosecondes générées dans le néon. Le gaz de détection est l'hélium, et les harmoniques présentées sont les harmoniques 17 à 23.

## 5.7 Implémentation expérimentale

Les mesures RABBITT que nous avons présentées au chapitre 4 peuvent être reconsidérées comme des mesures FROGCRAB. Cela donnerait accès à la caractérisation complète du train d'impulsions attosecondes. Pour obtenir une trace CRAB, on ne peut se contenter de la mesure de quelques oscillations de pics satellites : il faut avoir une trace complète, c'est à dire comprenant l'apparition et la disparition des satellites en fonction du délai. Le dispositif expérimental que nous avons utilisé permettait l'acquisition de telles traces grâce à la course importante de la translation piezo-électrique dans la ligne à retard.

Nous présentons sur la figure 5.15 une trace CRAB d'un train d'impulsions attosecondes généré dans le néon avec un laser de 50 fs. L'impulsion laser d'habillage est une réplique atténuée de l'impulsion de génération. Le gaz de détection utilisé dans le spectromètre de photoélectrons est l'hélium. Afin d'appliquer l'algorithme PCGPA à la trace, plusieurs opérations sont nécessaires. Tout d'abord, la trace CRAB doit être divisée par la section efficace de photoionisation du gaz cible, puis être tronquée et interpolée de telle sorte que les axes des temps et des fréquences soient reliés entre eux par transformée de Fourier. La trace obtenue, présentée sur la figure 5.15(a) a une taille de 512x512. Un bruit de fond est présent sur les mesures, et peut être enlevé grâce à un logiciel de traitement d'images. Le nombre total de photoélectrons détectés à chaque délai oscille lorsque le délai varie, à cause d'interférences dans le jet de génération. Il existe également des composantes continues de satellites, même lorsque les deux impulsions laser et UVX

ne se recouvrent plus temporellement. Ces composantes sont dues à la structure du dispositif expérimental : une partie du faisceau infrarouge qui génère les harmoniques est diffusée dans le jet de génération, passe à travers le diaphragme, et donne naissance à des satellites. Ces deux derniers points sont des sources d'erreurs systématiques dans les mesures. Afin de les minimiser, nous procédons à une normalisation du signal total, et nous soustrayons la composante continue des satellites. On obtient après traitement la trace de la figure 5.15(b).

Les figures 5.15(c-d) présentent les profils temporels du train d'impulsions attosecondes et du champ infrarouge obtenus après 4000 itérations de PCGPA. L'impulsion infrarouge mesurée a une durée de 53 fs à mi hauteur en intensité, ce qui est cohérent avec les mesures réalisées par autocorrélation d'intensité sur le laser. L'enveloppe du train d'impulsions attosecondes a une durée de 5.8 fs. Cette durée est courte par rapport à ce que l'on attend dans de telles conditions. Nous attribuons cet écart à la faiblesse de la largeur spectrale des harmoniques par rapport à la résolution du spectromètre. Le spectre mesuré est artificiellement élargi, et l'algorithme trouve une durée trop courte pour le train. Cet effet devrait également gêner la détermination de la dérive de fréquence harmonique, mais pas celle de la structure attoseconde. On obtient des impulsions attosecondes dont la durée à mi hauteur varie de 310 as au centre à 380 as sur le front montant. La fréquence instantanée du champ électrique est représentée sur la figure 5.15 (c). La dérive de fréquence des impulsions attosecondes varie au cours du train ; elle est positive, mais il s'y ajoute progressivement un terme de phase cubique.

Cette étude expérimentale préliminaire montre les limites du dispositif que nous avons mis en place : problèmes dus à l'interférence des deux faisceaux infrarouges dans le jet de génération, manque de filtrage du rayonnement harmonique pour sélectionner une gamme spectrale et éliminer toute trace d'infrarouge, et surtout trop faible largeur spectrale des harmoniques mesurées. Le dispositif de Lund et le second dispositif de Saclay, qui ont été présentés au chapitre 3, pourraient être utilisés pour réaliser des mesures FROGCRA B de trains d'impulsions attosecondes filtrés, sans interférences parasites dans le jet de génération. L'utilisation d'impulsions lasers plus brèves pour la génération permettrait de plus d'obtenir des harmoniques plus larges et donc de ne plus être limité par la résolution du spectromètre. Nous pensons donc que les premières caractérisations complètes de trains d'impulsions attosecondes seront réalisées prochainement.

## 5.8 Conclusion

La méthode FROGCRA B permet la caractérisation complète d'impulsions attosecondes arbitraires. Les dispositifs expérimentaux existants devraient permettre son implémentation rapidement. L'analyse des traces est simple, rapide, et systématique grâce à

l'algorithme PCGPA. Les sources d'erreurs systématiques que nous avons discutées en début de chapitre se sont révélées avoir une influence négligeable sur les profils temporels reconstruits. La programmation d'autres algorithmes, prenant en compte par exemple la dépendance de la modulation de phase en énergie, est toutefois envisageable.

FROGCRAB englobe et généralise plusieurs techniques de mesures existantes : RABBITT pour les trains d'impulsions attosecondes identiques ([Paul et al., 2001](#); [Muller, 2002](#)), la caméra à balayage de fente attoseconde pour les impulsions attosecondes uniques ([Itatani et al., 2002](#); [Kienberger et al., 2004](#)), et XFROG pour la mesure de la structure harmonique femtoseconde ([Mauritsson et al., 2004](#)), en sont des cas particuliers. Nous pensons donc que FROGCRAB a vocation à devenir une méthode standard de caractérisation d'impulsions attosecondes.

Enfin, FROGCRAB est une méthode de caractérisation en amplitude et en phase d'un paquet d'ondes électronique, et pourrait être utilisée pour mesurer des paquets d'ondes provenant de processus plus complexes que la simple photoionisation directe par une impulsion attoseconde, tels qu'une relaxation Auger ([Drescher et al., 2002](#)).



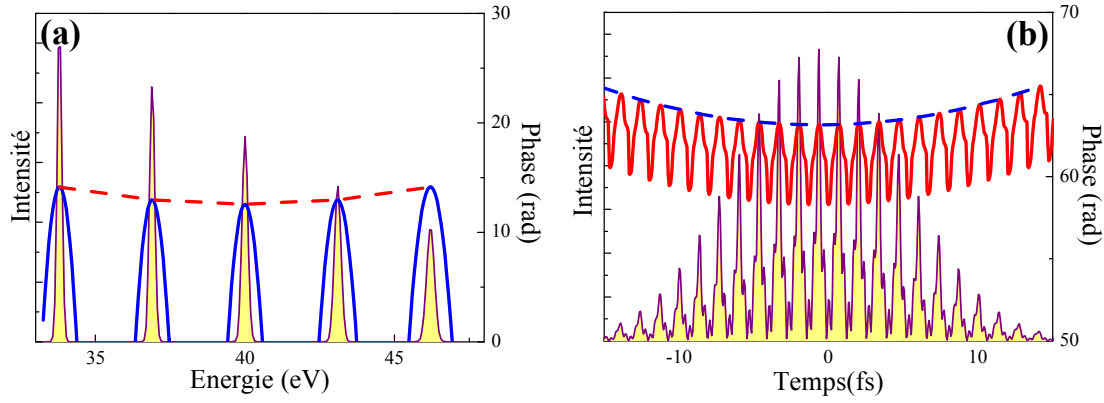
## Chapitre 6

# Conclusion générale et perspectives

La caractérisation temporelle de la génération d'harmoniques d'ordre élevé que nous avons effectuée présente deux intérêts principaux, que nous récapitulons dans ce chapitre de conclusion. Il s'agit d'abord de la mesure de la réponse d'un milieu soumis à un champ laser intense. Dans ce cadre, nous montrons que les deux dérives de fréquences, attoseconde et harmonique, sont en fait reliées puisqu'elles sont toutes deux caractéristiques de la dynamique électronique dans la génération. D'autre part, notre travail peut être vu comme la caractérisation d'une source de rayonnement UVX en vue d'application. Nous exposons dans la deuxième partie de ce chapitre des perspectives d'applications des trains d'impulsions attosecondes.

### 6.1 Etude de la réponse atomique en champ fort

Le rayonnement harmonique généré par interaction d'un laser intense avec un atome est une signature du comportement de cet atome en champ fort. Expérimentalement, nous avons vu que les conditions d'accord de phase, associées éventuellement à un filtrage spatial, permettent d'isoler les contributions d'une seule famille de trajectoires électroniques dans l'émission, et ainsi de mesurer macroscopiquement une partie de la réponse de l'atome unique. Nous en avons étudié la structure femtoseconde grâce à la méthode SPIDER, mesurant l'évolution de la dérive de fréquence harmonique en fonction de l'ordre, caractéristique de l'excursion des paquets d'ondes électroniques dans le continuum (chapitre 2). D'autre part, la réponse attoseconde a été mesurée sur une très large bande spectrale, ce qui a permis de faire le lien avec les recombinaisons de ces paquets d'ondes (chapitre 4). Dans les deux cas, les comparaisons avec les simulations semi-classiques et quantiques révèlent un bon accord, ce qui confirme la pertinence et



**Fig. 6.1:** Profils spectral (a) et temporel (b) présentant les dérivés de fréquences harmonique et attoseconde (voir texte)

la validité des modèles proposés.

Nous avons effectué le premier pas dans l'extension de telles mesures au cas d'autres milieux, en étudiant la synchronisation des harmoniques générées dans les molécules. La poursuite de ces études dans des molécules orientées ou des solides devrait permettre d'acquérir de précieuses informations sur leur comportement en champ fort.

Les deux dérivés de fréquence (harmonique et attoseconde) que nous avons étudiées sont les manifestations de la dépendance de la phase du dipôle harmonique en fonction de l'éclairement et de l'ordre harmonique. Nous récapitulons dans cette section les résultats obtenus afin de faire le lien entre ces deux quantités.

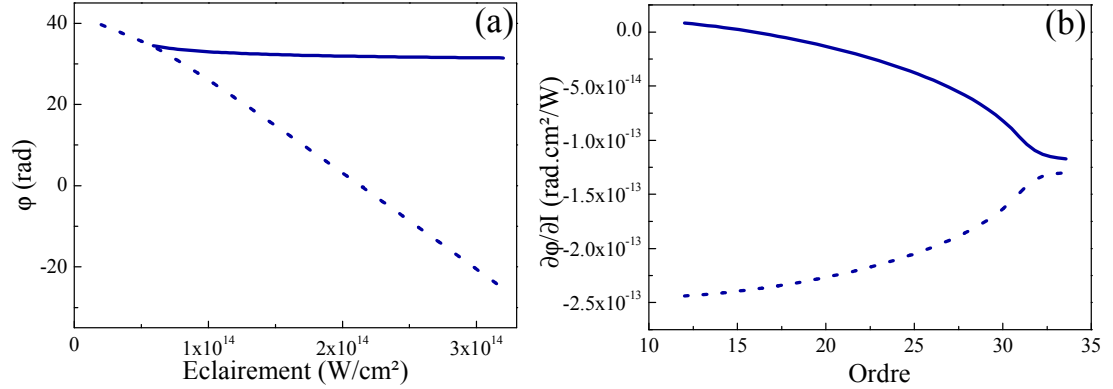
### 6.1.1 Phase du dipôle

Les propriétés temporelles du rayonnement harmonique sont régies par le comportement de la phase du dipôle, donnée dans le modèle de Lewenstein par :

$$\varphi_q^j = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[ \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2}{2} + I_p \right] dt \quad (6.1)$$

La dérive de fréquence harmonique négative provient de la variation de cette phase avec l'éclairement laser :  $\alpha_q = -\frac{\partial \varphi_q}{\partial I}$ . La dérive de fréquence attoseconde positive existe quant à elle même à éclairement constant, et provient de l'évolution de la phase du dipôle avec l'ordre harmonique :  $\Delta t_e \propto \frac{\partial^2 \varphi_q}{\partial q^2}$ .

Dans le cas général de la génération d'harmoniques par une impulsion laser, ces deux dérivés de fréquences sont présentes. La figure 6.1(a) présente un spectre harmonique réaliste, et la phase spectrale correspondante. La phase spectrale est quadratique autour de chaque pic harmonique (ligne bleue) : c'est la dérive de fréquence harmonique



**Fig. 6.2:** (a) Phase du dipôle harmonique en fonction de l'éclairement (harmonique 19 dans l'argon). (b) Dérivée en éclairement de la phase en fonction de l'ordre harmonique, à  $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

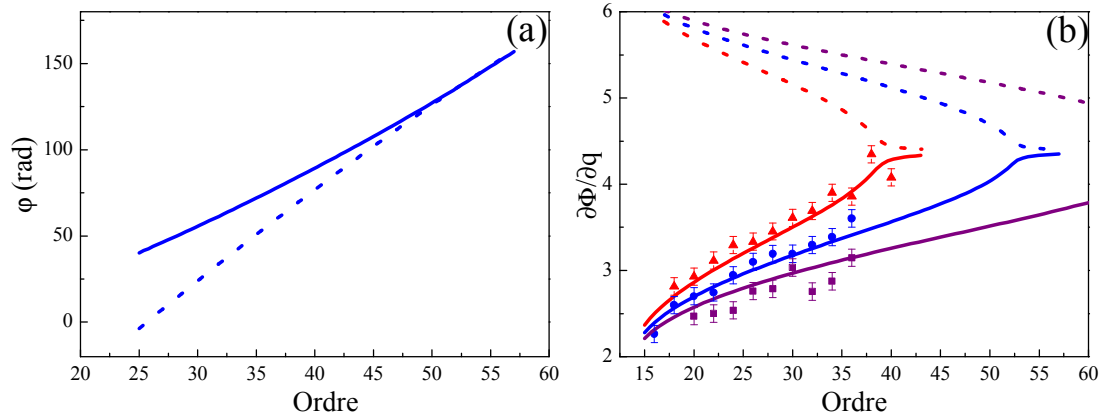
individuelle. Dans le domaine temporel (figure 6.1(b)) elle correspond à une phase quadratique à l'échelle femtoseconde (tirets bleus). La phase spectrale moyenne évolue également quadratiquement d'une harmonique à l'autre avec un signe opposé : c'est la dérive de fréquence attoseconde (tirets rouges). Il lui correspond une phase temporelle d'ordre 2 sur chaque impulsion attoseconde du train (ligne rouge).

### 6.1.2 Lien entre les dérives de fréquences harmonique et attoseconde

Nous présentons sur la figure 6.2(a) la dépendance en éclairement laser de la phase du dipôle, calculée par K. Varjú pour l'harmonique 19 générée dans l'argon (Varju et al., 2005). En calculant cette phase pour différentes harmoniques et en évaluant sa dérivée  $\frac{\partial\phi_q}{\partial I}$  en  $I = 1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  on obtient le graphe de la figure 6.2(b). Cette quantité est proportionnelle à la dérive de fréquence harmonique que nous avons mesurée grâce à la méthode SPIDER au chapitre 2. Du point de vue semi-classique, la dérive de fréquence harmonique est approximativement égale à l'énergie cinétique accumulée par l'électron sur sa trajectoire.  $\frac{\partial\phi_q}{\partial I}$  est négative, et d'autant plus importante que l'extension du mouvement dans le continuum est grande (voir chapitre 1). Sa variation en fonction de l'ordre harmonique peut être interprétée à partir de l'allure des trajectoires classiques de la figure 1.3 : pour les trajectoires courtes l'amplitude du mouvement augmente avec l'énergie cinétique de retour, et la situation est inverse pour les trajectoires longues. Cela signifie que la dérivée croisée  $\frac{\partial^2\phi_q}{\partial I \partial q}$  est négative pour les trajectoires courtes (et positive pour les longues).

La dérive de fréquence attoseconde résulte de l'évolution de la phase du dipole harmonique en fonction de l'ordre, que nous présentons sur la figure 6.3(a) dans le cas du néon à  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . En dérivant cette phase par rapport à l'ordre on obtient  $\frac{\partial\phi_q}{\partial q}$



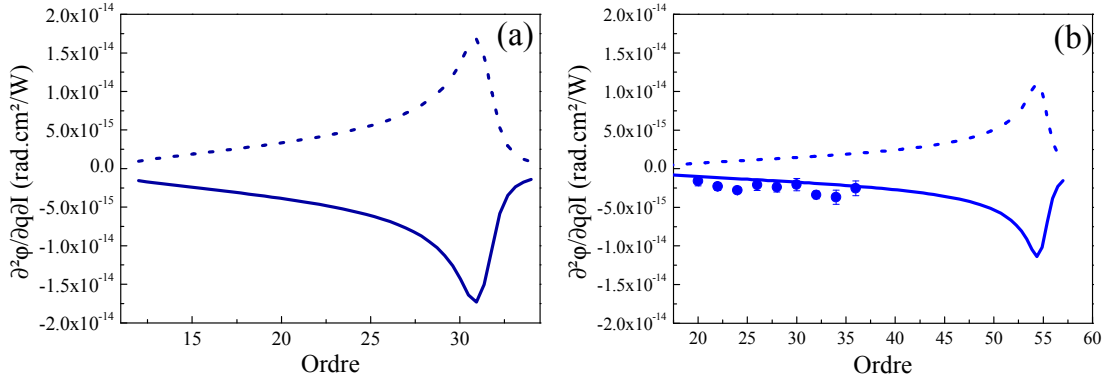


**Fig. 6.3:** (a) Phase du dipôle harmonique en fonction de l'ordre (dans le néon à  $3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). (b) Dérivée de la phase en fonction de l'ordre harmonique, à  $2$  (rouge),  $3$  (bleu) et  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (violet). Les points correspondent aux mesures RABBITT présentées au chapitre 3

qui n'est autre que l'instant d'émission harmonique caractérisé par la méthode RABBITT au chapitre 3. Nous représentons sur la figure 6.3(b) les résultats théoriques et expérimentaux dans le néon à différents éclaircements. L'analyse semi-classique a révélé que la dérivée  $\frac{\partial\phi_q}{\partial q}$  augmente lorsque l'amplitude du mouvement de l'électron augmente. Quand l'éclaircissement laser augmente, l'extension de la trajectoire nécessaire pour gagner une quantité d'énergie cinétique donnée diminue pour les trajectoires courtes. En conséquence,  $\frac{\partial^2\phi_q}{\partial I\partial q}$  est négative pour les trajectoires courtes (et positive pour les longues).

Nous avons discuté de l'évolution de la dérive de fréquence harmonique en fonction de l'ordre, et l'évolution de l'instant d'émission harmonique en fonction de l'éclaircissement. Toutes deux permettent de déterminer la dérivée croisée de la phase du dipôle :  $\frac{\partial^2\phi_q}{\partial I\partial q}$ . Nous représentons sur la figure 6.4(a) le résultat de la dérivation de  $\frac{\partial\phi_q}{\partial I}$ , c'est à dire en considérant l'évolution de la dérive de fréquence harmonique en fonction de l'ordre (figure 6.2(b)), et sur la figure 6.4(b) la courbe obtenue en dérivant les instants d'émission  $\frac{\partial\phi_q}{\partial q}$ , c'est à dire en considérant l'évolution de  $t_e$  en fonction de l'éclaircissement (figure 6.3(b)). Sur cette dernière figurent également les données expérimentales pour lesquelles les dérivées sont évaluées par ajustement linéaire de l'évolution de  $t_e$  en fonction de l'éclaircissement, à chaque ordre harmonique.

Cette analyse montre que les mesures RABBITT des instants d'émission à plusieurs éclaircissements permettent de déterminer également la dépendance de la dérive de fréquence harmonique en fonction de l'ordre, avec un bon accord avec la théorie. De la même manière, les mesures SPIDER harmoniques donnent accès à l'évolution de  $t_e$  en fonction de  $I$ . Nous ne représentons pas ici les résultats expérimentaux dont la comparaison avec les simulations n'est pas si bonne, comme nous l'avons vu au chapitre



**Fig. 6.4:** Dérivée croisée de la phase du dipôle harmonique  $\frac{\partial^2 \varphi_q}{\partial I \partial q}$ . (a) : argon à  $1.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ; (b) : néon à  $3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les trajectoires courtes en traits continus et les longues en tirets. Les points représentent les données expérimentales.

2. Les mesures réalisées par l'équipe de Lund par la technique XFROG ont donné un meilleur accord (Varju et al., 2005).

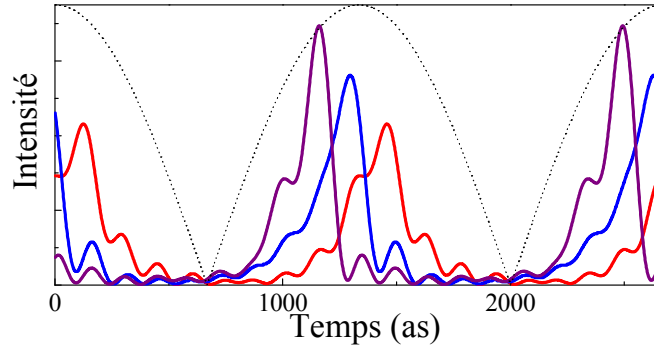
### 6.1.3 Influence sur le train d'impulsions attosecondes

La valeur de la dérivée croisée  $\frac{\partial^2 \varphi_q}{\partial I \partial q}$  a une influence sur la structure du train d'impulsions attosecondes : les instants d'émission varient en fonction de l'éclairement laser, ce qui entraîne une modification de l'écartement entre deux impulsions successives du train (Mauritsson et al., 2004). Cet effet peut être visualisé en traçant le profil temporel des trains d'impulsions attosecondes correspondants aux mesures de la figure 6.3. La reconstruction est effectuée pour un groupe de 10 harmoniques communes aux trois mesures (harmoniques 19 à 37), et prend en compte les amplitudes relatives des harmoniques (figure 6.5). L'aire des profils est normalisée. Un changement important de la synchronisation des impulsions par rapport au champ infrarouge est notable. Par conséquent les impulsions d'un train généré par une impulsion laser dont l'éclairement varie dans le temps ne sont pas également espacées. Afin de préciser la variation de l'écartement, nous considérons le cas des trajectoires courtes, et supposons pour simplifier l'analyse que  $\frac{\partial^2 \varphi_q}{\partial I \partial q} \approx -A$ , où  $A$  est une constante positive. Alors la variation de l'instant d'émission de deux impulsions attosecondes successives est  $\delta t_e = -A \delta I$ . Au voisinage du maximum d'une l'impulsion laser gaussienne, l'évolution temporelle de l'éclairement est quasi-quadratique :

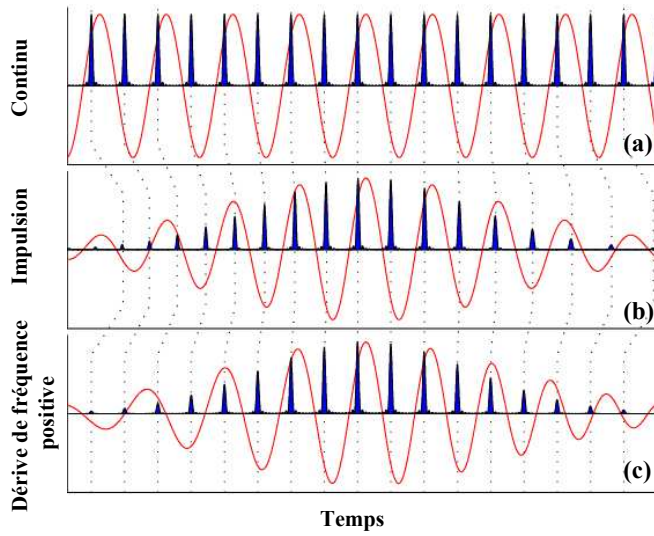
$$I(t) = I_0 e^{-4 \ln(2) t^2 / \tau_0^2} \approx I_0 (1 - 4 \ln(2) t^2 / \tau_0^2) \quad (6.2)$$

L'écart entre deux impulsions attosecondes successives est donné par :

$$T_0/2 + \delta t_e \approx (T_0/2)(1 + 8 \ln(2) I_0 A t / \tau_0^2) \quad (6.3)$$



**Fig. 6.5:** Trains d'impulsions attosecondes mesuré, obtenus par superposition des harmoniques 19 à 37 générées dans le néon à  $I_0 = 2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (rouge),  $3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (bleu) et  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (violet). La ligne pointillée représente le module du champ infrarouge.



**Fig. 6.6:** Illustration de l'influence de la variation temporelle de l'éclairement laser sur le train d'impulsions attosecondes. (a) Laser continu : la dérive de fréquence harmonique est nulle et les impulsions sont également espacées. (b) Impulsion laser à profil gaussien : l'écartement entre impulsions augmente régulièrement au cours du train. (c) Impulsion laser à dérive de fréquence positive : l'écartement entre impulsions attosecondes est constant.

Il augmente régulièrement au cours du temps. Cet effet est illustré sur la figure 6.6. Pour une impulsion infrarouge de 50 fs et  $3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, en prenant  $A = -0.3 \times 10^{-14}$  rad.cm<sup>2</sup>/W (figure 6.4), l'écart varie de 100 as entre  $t = -25$  fs et  $t = 25$  fs, c'est-à-dire sur toute la durée du train. Cette variation est donc faible et peu susceptible de poser problème pour l'utilisation d'un train dans des expériences d'applications. Elle peut de plus être compensée en introduisant une dérive de fréquence positive sur le laser générateur (figure 6.4 (c), (Mauritsson et al., 2004; Varju et al., 2005)).

Comme nous l'avons déjà noté dans l'analyse de la synchronisation attoseconde des harmoniques, la dérive de fréquence attoseconde  $\Delta t_e$  dépend également de l'éclairement : la dérivée  $\frac{\partial^3 \varphi}{\partial t^2 \partial I}$  est non nulle. Ceci explique que sur la figure 6.5, les impulsions générées à plus faible éclairement sont plus longues. La durée des impulsions attosecondes diminue ici quasiment d'un facteur 2 lorsque l'éclairement double, de 250 as à 134 as. Par conséquent, au sein d'un train d'impulsions attosecondes les impulsions situées sur les ailes sont plus longues que celles au voisinage du maximum du train. Tous ces effets, auxquels on peut accéder à l'aide de séries de mesures SPIDER et RABBITT, pourraient être déterminés de manière complète grâce à la technique FROGCRAB.

## 6.2 Applications des trains d'impulsions attosecondes

Les mesures que nous avons effectuées dans ce travail de thèse peuvent également être considérées comme la caractérisation d'une source de rayonnement UVX en vue d'applications. La méthode SPIDER a permis une caractérisation monocoup des impulsions harmoniques individuelles avec un dispositif expérimental simple. Elle peut donc être mise en oeuvre en routine sur des expériences utilisant les harmoniques pour effectuer des mesures de spectroscopie pompe-sonde femtoseconde. Les mesures de confinement temporel de l'émission par la porte d'ellipticité ouvrent la voie à une étude plus générale de la réduction de la durée harmonique, qui pourrait être réalisée en utilisant des algorithmes génétiques pour rétro-agir sur les conditions de génération.

Dans le domaine attoseconde, la mise en évidence d'une limitation de la durée que l'on peut obtenir en augmentant le nombre d'harmoniques superposées constitue un point important de ce travail de thèse. Les études expérimentales d'optimisation des conditions de génération associées à la sélection spectrale et à la compression d'impulsions, ont permis de contrôler et compenser les effets de la dérive de fréquence attoseconde. La génération d'harmoniques d'ordre élevé permet donc désormais d'obtenir des trains d'impulsions attosecondes, accordables (sélection spectrale par des filtres ou des multicouches), contrôlées en phase (dispersion dans les filtres), avec des équipements laser standards. Leur caractérisation complète par la méthode FROGCRAB devrait en permettre un contrôle encore meilleur.

Les impulsions attosecondes ont vocation à être utilisées comme pompe ou sonde de phénomènes ultrarapides tels que les dynamiques électroniques de coeur dans les atomes. Une expérience utilisant une impulsion unique UVX de 650 as comme pompe et une impulsion infrarouge de 7 fs comme sonde a récemment été réalisée (Drescher et al., 2002). L'impulsion UVX ionise un électron en couche interne, et un électron secondaire est ensuite libéré par effet Auger. Le champ infrarouge est utilisé pour mesurer la durée du paquet d'ondes électronique Auger par corrélation croisée. La durée de vie Auger mesurée est d'environ 8 fs. Le même principe pourrait sonder des effets plus brefs, de durée attoseconde : l'information sur la structure temporelle du paquet d'ondes électronique serait alors encodée dans les modifications de son spectre par le champ infrarouge, comme nous l'avons vu dans le chapitre 5. L'analyse FROGCRAB que nous avons développée pourrait d'ailleurs être utilisée pour caractériser complètement le paquet d'ondes Auger en amplitude et en phase. La difficulté principale pour étendre ces mesures au domaine attoseconde est que les effets électroniques (Auger ou Coster-Kronig) plus rapides nécessitent une énergie de photon plus importante, de l'ordre de quelques centaines d'eV voire du keV. La génération d'impulsions attosecondes dans ces gammes d'énergies est donc une étape essentielle dans la perspective de réaliser de telles applications (Seres et al., 2005).

Dans le cadre de l'étude d'un processus électronique ayant une durée caractéristique  $\tau$  inférieure au demi-cycle optique, il est envisageable d'utiliser un train d'impulsions attosecondes plutôt qu'une impulsion unique. En effet, si le phénomène est complètement relaxé en une demi-période optique, le train agit comme une source à haut taux de répétition (PHz). Afin de permettre une résolution temporelle correcte, les impulsions du train doivent avoir une durée  $\Delta t$  suffisamment brève :  $\Delta t < \tau < T_0/2$ . Chaque impulsion effectue une excitation quasi-instantanée à l'échelle de l'évolution du processus électronique. Le paquet d'ondes est alors émis durant  $\tau$ . L'impulsion suivante du train voit un milieu relaxé, identique à celui vu par l'impulsion précédente. La caractérisation des paquets d'ondes électronique émis peut être réalisée par FROGCRAB en utilisant le champ laser comme porte de phase.

Une seconde voie possible pour les applications des trains d'impulsions attosecondes consiste à sonder des processus qui ont la même périodicité que le train. De la même manière qu'un stroboscope permet de "figer" un mouvement périodique, un train peut être utilisé pour mesurer des dynamiques de périodicité  $T_0/2$ . Cette idée a été proposée en 1996 par Antoine et al. (1996a) sous le nom de TRAS (Time-Resolved Attosecond Spectroscopy) pour sonder la dynamique de la génération d'harmoniques ou de l'ionisation au dessus du seuil. Plus récemment, une étude théorique a montré la possibilité de contrôler la génération d'harmoniques d'ordre élevé avec un train d'impulsions attosecondes (Schafer et al., 2004).

Les avantages de l'utilisation d'un train d'impulsions attosecondes sont multiples. Tout

d'abord, en 2005 une seule équipe dispose d'impulsions attosecondes uniques (Kienberger et al., 2004), ce qui montre la difficulté de les produire. En revanche, des trains d'impulsions attosecondes ont été caractérisés dans au moins 6 laboratoires : LOA à Palaiseau (Paul et al., 2001), FOM à Amsterdam (Aseyev et al., 2003), SPAM à Saclay (Mairesse et al., 2003), MPQ à Garching (Tzallas et al., 2003), LLC à Lund (Lopez-Martens et al., 2004b), et CELIA à Bordeaux. D'autre part, les impulsions attosecondes générées par Kienberger et al. (2004) sont situées dans la coupure, et sont donc peu intenses. Le développement des techniques de porte de polarisation devrait certes permettre d'obtenir des impulsions uniques dans le plateau (Shan et al., 2005), mais en utilisant des impulsions infrarouges de l'ordre de moins de 10 fs, ce qui n'est pas standard. Les harmoniques du plateau constituent naturellement des trains d'impulsions attosecondes intenses, accordables et contrôlables en durée. Cette flexibilité est un point fort des trains pour les applications.

Nous exposons dans le paragraphe suivant les résultats d'une expérience montrant la possibilité d'utiliser des trains d'impulsions pour produire des paquets d'ondes électroniques, qui peuvent être utilisés comme sonde de dynamiques moléculaires. Dans le second paragraphe, nous proposons de sonder la dynamique de l'ionisation tunnel avec un train d'impulsions attosecondes.

### 6.2.1 Contrôle de la dynamique électronique en champ laser intense

L'ionisation tunnel par un champ laser intense permet d'injecter des paquets d'ondes électroniques dans le continuum à des instants bien définis (au voisinage des maxima du champ électrique), et avec une énergie cinétique initiale nulle. Ces électrons peuvent alors être accélérés par le champ, et avoir des comportements variés selon leur instant d'ionisation. Ils peuvent simplement être accélérés et s'éloigner de l'ion parent : c'est le cas des électrons "directs" de l'ionisation au dessus du seuil ou ATI (*Above Threshold Ionization*) (Agostini et al., 1979) ; ils peuvent revenir au voisinage de l'ion parent et se recombiner en émettant un photon (génération d'harmoniques d'ordre élevé), ou subir une recollision puis s'éloigner (électrons "indirects" dans l'ionisation au dessus du seuil).

Nous avons eu un aperçu dans ce travail de thèse de la richesse du processus consécutif à l'ionisation tunnel qu'est l'émission d'harmoniques d'ordre élevé. La recollision électronique présente également des caractéristiques importantes, et peut être utilisée comme une sonde de dynamiques moléculaires : Niikura *et al.* ont ainsi utilisé les paquets d'ondes électroniques accélérés par le champ laser pour étudier la fragmentation d'une molécule (Niikura et al., 2002, 2003). Dans ces deux cas, les caractéristiques du paquet d'ondes électronique qui interagit avec l'ion parent sont uniquement déterminées par les propriétés du champ laser. En remplaçant l'étape d'ionisation tunnel par une photoionisation UVX attoseconde, on pourrait modifier la structure du paquet d'ondes

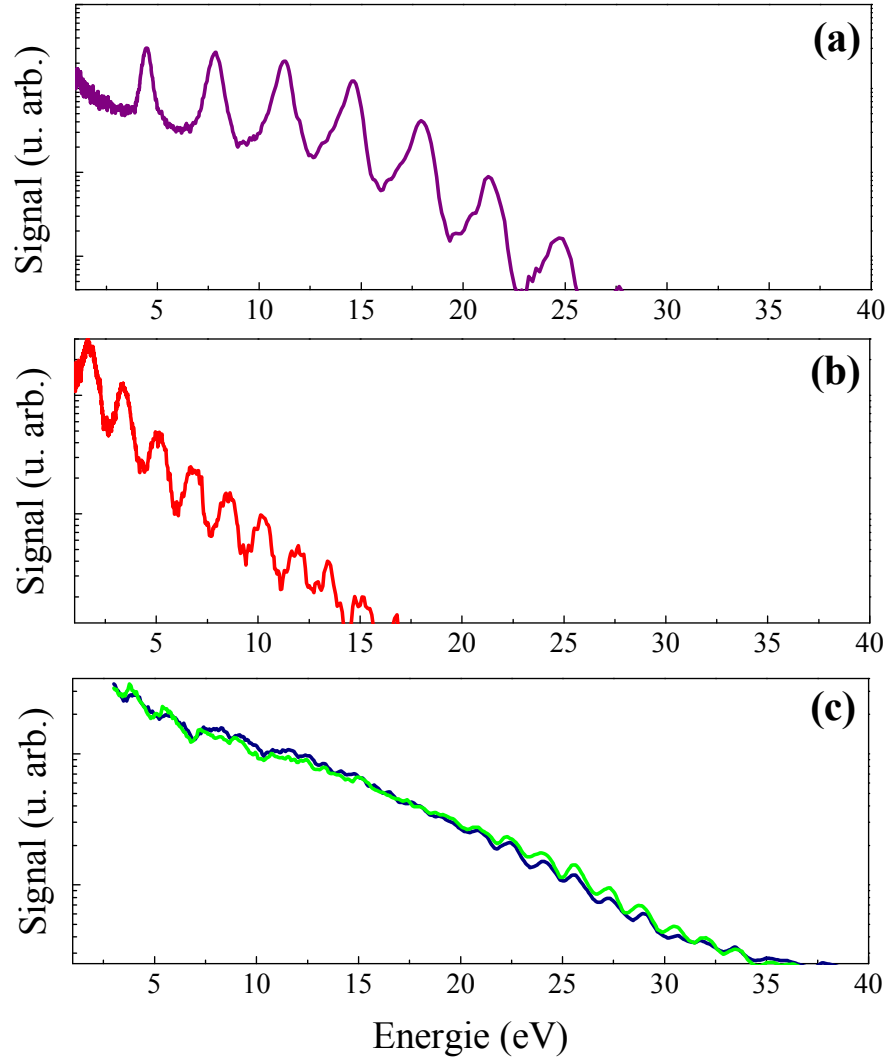
et donc les propriétés de la génération d’harmoniques d’ordre élevé, de l’ionisation au dessus du seuil, ou de la fragmentation moléculaire. Un train d’impulsions attosecondes peut tout à fait convenir pour créer périodiquement des paquets d’ondes électroniques attosecondes, avec la même périodicité que celle de l’ionisation tunnel.

Cette idée a été développée théoriquement par [Schafer et al. \(2004\)](#) dans le cadre du contrôle de la génération d’harmoniques par un train d’impulsions attosecondes. Un groupe de 5 harmoniques consécutives constituant un train d’impulsions de 250 as est focalisé dans un jet d’hélium avec un faisceau infrarouge intense. Le train joue le rôle d’injecteur de photoélectrons dans le continuum. L’énergie des harmoniques qui le constituent détermine l’énergie cinétique initiale des électrons. La durée attoseconde des impulsions UVX permet de définir un instant d’ionisation, et l’ajout d’un retard entre faisceaux infrarouge et UVX donne la possibilité de choisir la phase du champ électrique lorsque les électrons sont libérés dans le continuum. Selon cette dernière, le processus d’accélération-recombinaison radiative menant à la génération d’harmoniques sera plus ou moins efficace. Les simulations de [Schafer et al. \(2004\)](#) ont révélé une forte influence du délai entre infrarouge et train d’impulsions attosecondes sur la génération d’harmoniques, et ont montré que le train permettait un contrôle des trajectoires électroniques dans le processus.

Le même type de contrôle devrait pouvoir être réalisé dans le cadre de l’ATI ([Gaarde, 2004](#)). Nous exposons tout d’abord quelques caractéristiques générales des spectres d’ATI. L’ionisation au dessus du seuil provient de l’accélération d’électrons libérés dans le continuum par effet tunnel tous les demi-cycles optiques. Deux paquets d’ondes électroniques consécutifs sont émis dans des directions opposées, et ne peuvent pas interférer spectralement. Le spectre électronique est donc constitué de pics séparés de  $\omega_0$ . Une fois libérés, les électrons peuvent gagner une énergie cinétique importante lors de l’accélération par le champ électrique. Cette dernière peut être déterminée par la résolution des équations de Newton (de la même manière que la détermination de la loi de coupure dans la génération d’harmoniques d’ordre élevé), et atteint  $2U_p$  pour les électrons ”directs”, et  $10U_p$  pour les ”indirects”, qui ont subi une recollision avec l’ion parent.

Nous avons entrepris l’étude expérimentale de l’ATI en présence d’un train d’impulsions attosecondes à Saclay en 2004 avec le dispositif expérimental présenté sur la figure 3.6. Les avantages de cette configuration par rapport à celle utilisée dans les mesures RABBITT du chapitre 4 sont d’une part la possibilité de filtrer le rayonnement harmonique, et ainsi de sélectionner un train d’impulsions attosecondes, et d’autre part la possibilité d’utiliser un faisceau ”sonde” intense puisqu’il ne passe pas dans le jet de génération.

La première étape de l’expérience est la production d’un train d’impulsions attosecondes. Nous générons pour cela des harmoniques dans un jet d’argon, à un éclairement de  $9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Un filtre en aluminium de 160 nm d’épaisseur permet de sélectionner les harmoniques d’ordre supérieur à 11, et de compenser partiellement la



**Fig. 6.7:** (a) Spectre d'ionisation de l'argon par un train d'impulsions attosecondes généré dans l'argon à  $9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  et filtré par un filtre d'aluminium de 160 nm d'épaisseur. (b) Spectre d'ATI dans l'argon par une impulsion infrarouge à  $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . (c) Spectres obtenus en superposant le train d'impulsions attosecondes et le faisceau infrarouge avec deux retards différents séparés d'un quart de période laser.



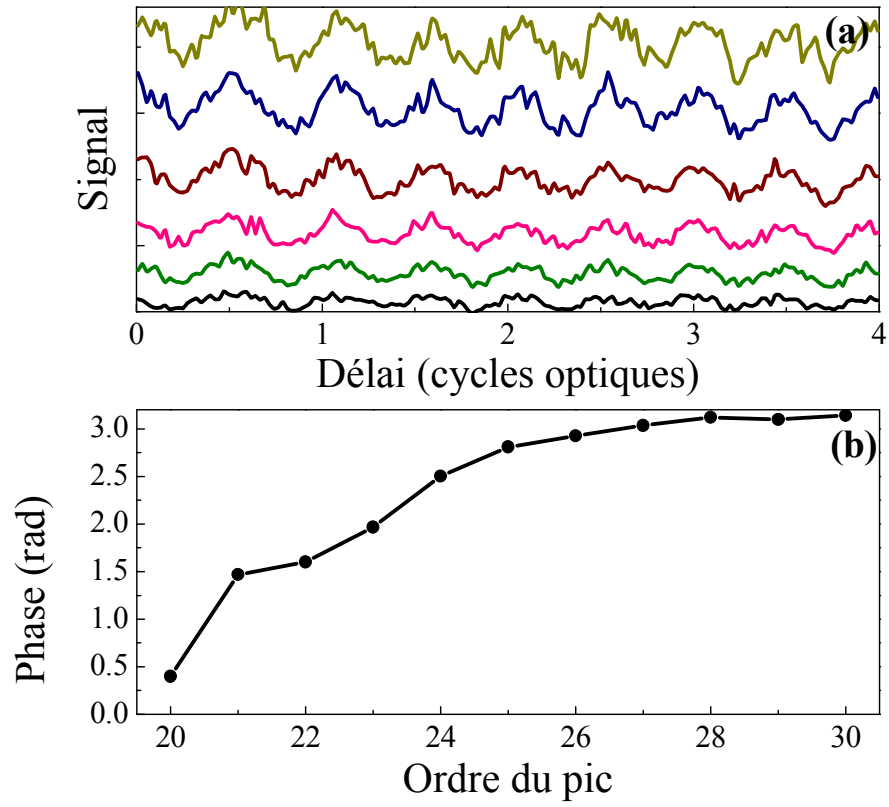
dérive de fréquence attoseconde positive (Lopez-Martens et al., 2005). Nous obtenons ainsi un train d'impulsions de durée estimée à environ 250 as, que nous focalisons dans un second jet d'argon placé dans le volume source du spectromètre de photoélectrons. Le spectre harmonique obtenu est représenté sur la figure 6.7(a). Il est constitué des harmoniques 13 à 25, la coupure se situant à l'ordre 21.

Dans un deuxième temps, nous éteignons le faisceau de génération et focalisons le faisceau infrarouge du bras "sonde" de la ligne à retard dans le jet du spectromètre, à un éclairement d'environ  $5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, ce qui correspond à une énergie pondéromotrice  $U_p \approx 3$  eV. Le spectre de photoélectrons alors obtenu est présenté sur la figure 6.7(b). Il est constitué de pics séparés d'une période laser, ce qui est typique de l'ATI.

Enfin, nous focalisons ensemble le train d'impulsions attosecondes et le faisceau infrarouge, avec un retard variable. Nous présentons sur la figure 6.7(c) le spectre obtenu dans ce cas, pour deux délais différents entre UVX et infrarouges séparés d'un quart de période laser. Les pics sont situés à la même position que les pics d'ATI sur la figure 6.7(b), mais sont fortement élargis, et s'étendent à des énergies bien supérieures au cas où seul l'infrarouge est présent. Le spectre s'étale à présent jusque 30 eV au dessus du seuil, ce qui correspond à  $10U_p$  c'est-à-dire l'énergie maximale du second plateau d'ATI. Il semblerait donc que le train d'impulsions attosecondes permette de favoriser le processus de recollision dans l'ionisation au dessus du seuil.

Cependant, il est également possible que les ordres élevés que nous détectons proviennent simplement de l'accélération d'électrons sans recollision, *i.e.* ne soient que des pics satellites d'ordre élevé, résultant de l'absorption d'un photon harmonique et de plusieurs photons infrarouges. L'énergie maximale que peut acquérir un électron lancé avec une énergie initiale  $W_0$  dans le continuum peut être calculée à partir de la formule 5.5, et vaut  $2U_p + 8\sqrt{W_0 U_p}$ . Dans le cas présent  $W_0 \approx 20$  eV pour une harmonique de la fin du plateau, et le champ peut donc communiquer environ 20 eV d'énergie cinétique à un électron, ce qui correspond à une énergie finale de 40 eV. Cette énergie est supérieure à la position de la seconde coupure du spectre d'ATI. Il n'est donc pas possible de conclure simplement quant à la contribution de la recollision aux électrons de haute énergie.

Lorsque le délai varie, la structure du spectre obtenu en superposant les faisceaux infrarouge et UVX est modifiée (figure 6.7(c)). La variation de l'amplitude des pics d'ionisation les plus élevés en fonction du délai est présentée sur la figure 6.8(a). Les signaux présentent une oscillation à  $2\omega_0$ , qui est bien résolue quoique de faible amplitude. Nous mesurons la phase de l'oscillation en fonction de l'ordre du pic et la représentons sur la figure 6.8(b). La référence de phase est ici arbitraire. Nous ne parvenons pas à résoudre correctement les pics d'ordre inférieur à 20, dont l'élargissement est trop important. Il apparaît un net saut de phase, voisin de  $\pi$ , aux alentours de l'ordre 21 (ce qui correspond à une énergie d'environ 17 eV). La position de ce saut coïncide avec la



**Fig. 6.8:** (a) Oscillation de quelques pics d'ionisation en fonction du délai (ordres 25 à 30, les ordres les plus faibles correspondent aux signaux les plus élevés). (b) Phase de l'oscillation des pics d'ionisation en fonction de l'ordre.

séparation entre deux zones sur les spectres de la figure 6.7(c) : il y a un échange périodique d'électrons de part et d'autre de cette énergie. A certains délais, la zone de basse énergie est déplétée au profit de l'autre, ce qui signifie que les électrons subissent alors une accélération plus importante dans le champ laser. Les zones de faible et haute énergie oscillent donc en opposition de phase, puisque le nombre total d'électrons produits est constant.

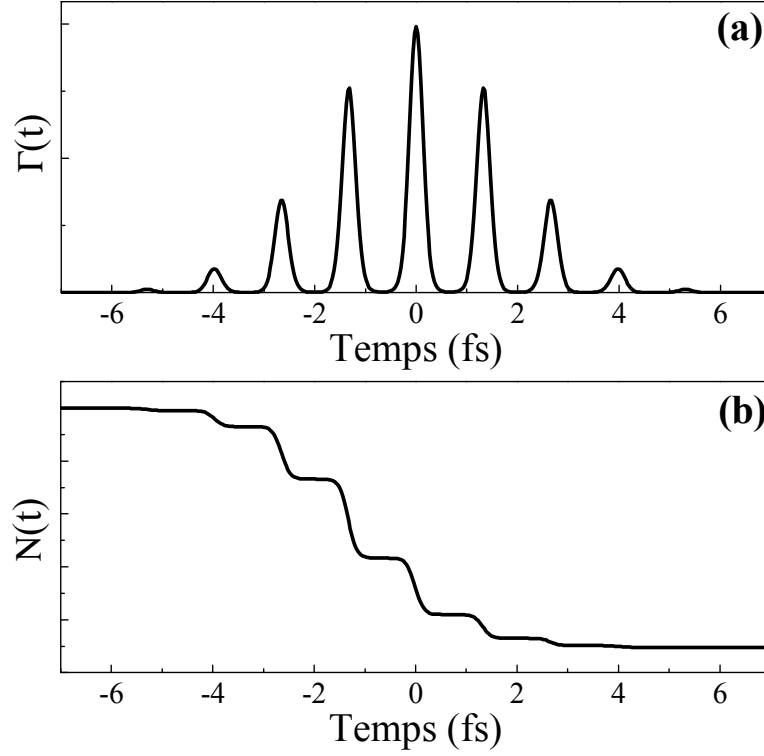
La variation que nous mesurons est minime mais reproductible. Nous attribuons la faiblesse de cet effet à la stabilité médiocre de notre dispositif expérimental lors de cette mesure. Des résultats similaires, mais avec une bien meilleure résolution temporelle, ont été obtenus à Lund ([Johnsson et al., 2005](#)).

Afin d'obtenir plus d'informations sur le processus en jeu dans cette expérience, il faudrait pouvoir séparer les électrons provenant d'une recollision de ceux qui sont simplement accélérés dans le champ laser. Une étude des distributions angulaires devrait permettre cela. Il serait également possible de mesurer la variation de la structure du spectre en fonction de l'ellipticité du laser, puisqu'on s'attend alors à un comportement différent, avec une très faible probabilité de recollision. Enfin, il faut garder à l'esprit dans ces études l'existence d'une restriction de principe quant à la création d'une source de paquets d'ondes électroniques en vue d'applications basées sur la recollision : si le train d'impulsion attoseconde a une fréquence moyenne trop élevée, les électrons libérés dans le continuum ne peuvent pas revenir sur l'atome ou la molécule parente.

### 6.2.2 Sonder l'ionisation tunnel

L'ionisation tunnel, qui a lieu lorsqu'un atome est soumis à un champ laser intense, permet l'injection d'électrons dans le continuum tous les demi-cycles optiques, c'est-à-dire avec la même périodicité qu'un train d'impulsions attosecondes généré par le même laser. Cette observation est à la base d'une récente proposition de Fabien Quéré pour sonder l'ionisation tunnel avec un train d'impulsions attosecondes.

Nous considérons un atome soumis à un champ laser suffisamment intense pour produire une déplétion significative du niveau fondamental. Le taux d'ionisation instantané  $\Gamma(t)$  peut être calculé dans l'approximation du champ fort ([Yudin and Ivanov, 2001](#)). Nous effectuons ici une étude qualitative à partir des formules données dans ([Yudin and Ivanov, 2001](#)), mais sans les facteurs pré-exponentiels. Les taux calculés sont donc en unités arbitraires. Nous représentons sur la figure 6.9(a) l'évolution de  $\Gamma(t)$  pour une impulsion gaussienne de 20 fs à 800 nm, dont le champ est cosinusoidal. Le taux d'ionisation est fortement piqué aux alentours des instants auxquels le champ laser est maximum (en valeur absolue), ce qui est intuitif. La population du fondamental  $N$  est



**Fig. 6.9:** (a) Taux d'ionisation instantané par une impulsion laser de 20 fs. (b) Population du fondamental.

régie par l'équation :

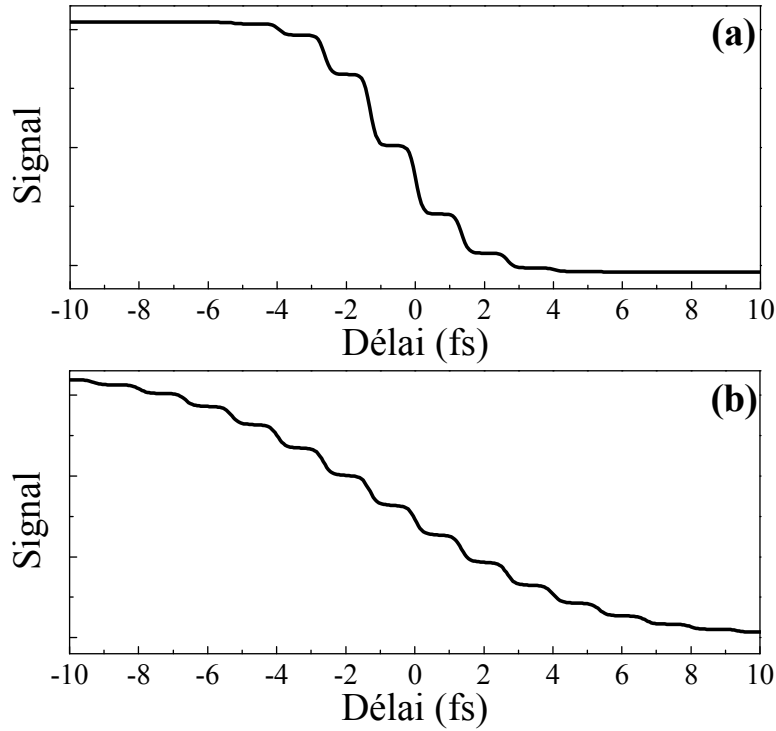
$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\Gamma(t)N(t) \quad (6.4)$$

qui peut être intégrée en :

$$N(t) = N_0 e^{-\int_{-\infty}^t \Gamma(t') dt'} \quad (6.5)$$

Cette formule permet de calculer la population instantanée (figure 6.9(b)).  $N(t)$  présente une évolution "en escalier", avec une décroissance brutale à chaque maximum du champ laser, c'est à dire toutes les demi-périodes.

Une impulsion attoseconde peut être utilisée pour sonder la population instantanée du fondamental, et donc le processus d'ionisation tunnel. Le principe de cette proposition d'expérience est le suivant. L'impulsion infrarouge intense joue le rôle de pompe, en produisant une déplétion du fondamental. On focalise dans le même milieu une impulsion attoseconde qui sert de sonde, avec un retard variable par rapport au laser. L'impulsion UVX photoionise le gaz par absorption à un photon. Le signal total de photoionisation UVX est proportionnel à la population du fondamental, et suit donc son évolution temporelle lorsque le retard varie. Afin d'illustrer cette idée, on peut représenter l'allure du signal que l'on obtiendrait en fonction du délai en calculant la trace de corrélation croisée de la population du fondamental et de l'intensité UVX (figure 6.10(a)). Un



**Fig. 6.10:** Signal de photoionisation UVX par une impulsion de 250 as (a), et par un train de 10 fs d'impulsions de 250 as (b), en présence d'une impulsion infrarouge de 20 fs.

train d'impulsions attosecondes peut également convenir pour réaliser cette expérience, puisque la pseudo-périodicité du train est la même que celle de la population du fondamental. Nous représentons sur la figure 6.10(b) la trace obtenue avec un train de 10 fs, constitué d'impulsions attosecondes de 250 as. Les sauts du signal de photoionisation sont moins marqués que dans le cas d'une impulsion unique, mais sont tout de même nettement observables. Le train ayant été préalablement caractérisé par FROGCRAb, une telle mesure donnerait accès à la dynamique de l'ionisation tunnel.

La principale difficulté expérimentale pour réaliser cette expérience consiste à isoler les électrons provenant de l'ionisation UVX. En effet, comme nous l'avons vu au chapitre 5, leur spectre est fortement modifié par la présence du champ infrarouge intense, et peut subir un décalage important (d'autant plus important que la fréquence centrale des impulsions attosecondes est élevée). De plus, l'ionisation tunnel donne naissance à des électrons qui peuvent être accélérés dans le champ et devenir très énergétiques (électrons d'ATI). Il est donc probable qu'un recouvrement en énergie des deux voies d'ionisation ait lieu. Une alternative pour isoler les électrons provenant de la photoionisation UVX est de croiser les polarisations du laser et du champ attoseconde. Il serait alors possible en résonnant angulairement les spectres de séparer les voies d'ionisation, et de mesurer le signal total de photoionisation UVX en fonction du délai. Cette expérience pourrait être

réalisée avec le second dispositif expérimental que nous avons utilisé pour les mesures RABBITT (figure 3.6), et constituer la première application des trains d'impulsions attosecondes.



## Annexe A

# Système d'unités

Sauf mention contraire, les études théoriques présentées dans ce manuscrit ont été menées dans le système d'unités atomiques. Nous rappelons ici les facteurs de conversion entre ce système d'unités (u.a.) et le système international (M.K.S.A.) pour les différentes grandeurs physiques que nous utilisons fréquemment dans le texte.

**Grandeurs définissant le système d'unités atomiques :**

Dimension	Unité	Quantité physique	Valeur
Moment angulaire	$\hbar$	Constante de Planck divisée par $2\pi$	$1.05459 \times 10^{-34} \text{ J.s}$
Masse	$m$	Masse de l'électron	$9.10953 \times 10^{-31} \text{ kg}$
Charge	$e$	Valeur absolue de la charge de l'électron	$1.60219 \times 10^{-19} \text{ C}$
Longueur	$a_0 = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{me^2}$	Rayon de Bohr	$5.29177 \times 10^{-11} \text{ m}$

**Définition de quelques grandeurs dans le système d'unités atomiques :**

Dimension	Signification physique	Valeur
Vitesse	Vitesse d'un électron sur la 1 <sup>e</sup> orbite de Bohr	$2.18769 \times 10^6 \text{ m s}^{-1}$
Temps	Temps mis par l'électron pour parcourir un rayon de Bohr	$2.41889 \times 10^{-17} \text{ s}$
Energie	Double du potentiel d'ionisation de l'hydrogène	$4.35981 \times 10^{-18} \text{ J} = 27.2116 \text{ eV}$
Champ électrique (Amplitude)	Champ ressenti par l'électron sur la 1 <sup>e</sup> orbite de Bohr	$5.14225 \times 10^{11} \text{ V m}^{-1}$
(Intensité)		$3.5095 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$





# Annexe B

## Publications

### **High Harmonic XUV Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction**

Y. Mairesse, O. Gobert, P. Breger, H. Merdji, P. Meynadier, P. Monchicourt, M. Perdrix, P. Salières and B. Carré.  
Physical Review Letters **94**, 173903 (2005)

### **Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-Rays**

Y. Mairesse, A. de Bohan, L.J. Frasinski, H. Merdji, L.C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taieb, B. Carré, H.G. Muller, P. Agostini and P. Salières.  
Science **302**, 1540 (2003)

### **Optimization of Attosecond Pulse Generation**

Y. Mairesse, A. de Bohan, L.J. Frasinski, H. Merdji, L.C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, T. Auguste, B. Carré, H.G. Muller, P. Agostini and P. Salières.  
Physical Review Letters **93**, 163901 (2004)

### **Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses**

R. Lopez-Martens, K. Varju, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M.B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C.-G. Wahlstrom and A. L'Huillier.  
Physical Review Letters **94**, 033001 (2005)

### **Frequency Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts**

Y. Mairesse and F. Quéré.  
Physical Review A **71**, 011401(R) (2005)

### **Temporal characterization of attosecond XUV fields**

F. Quéré, Y. Mairesse and J. Itatani.  
Journal of Modern Optics **52**, 339 (2005)

### **Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses**

K. Varju, Y. Mairesse, B. Carré, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, K. J. Schafer, P. Balcou, A. L'Huillier and P. Salières.  
Journal of Modern Optics **52**, 379 (2005)

### **Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields**

P. Johnsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, J. Mauritsson, C. Valentin, T. Remetter, K. Varju, M. B. Gaarde, Y. Mairesse, H. Wabnitz, P. Salières, Ph. Balcou, K. J. Schafer, and A. L'Huillier.  
Physical Review Letters **95**, 013001 (2005)



# High Harmonic XUV Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction

Y. Mairesse, O. Gobert, P. Breger, H. Merdji, P. Meynadier, P. Monchicourt, M. Perdrix, P. Salières, and B. Carré

*DSM-DRECAM-Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France*

(Received 8 December 2004; published 5 May 2005)

We demonstrate the first experimental complete temporal characterization of high-harmonic XUV pulses by spectral phase interferometry, with an all-optical setup. This method allows us to perform single-shot measurements of the harmonic temporal profile and phase, revealing a remarkable shot-to-shot stability. We characterize harmonics generated in argon by a 50 fs 800 nm laser pulse. The 11th harmonic is found to be 22 fs long with a negative chirp rate of  $-4.8 \times 10^{27} \text{ s}^{-2}$ . This duration can be reduced to 13 fs by modulating the polarization of the generating laser. The technique is easy to implement and could be routinely used in femtosecond XUV pump-probe experiments with harmonics.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.173903

PACS numbers: 42.65.Ky, 32.80.Wr, 42.65.Re

High order harmonic generation (HHG) provides a versatile source of extreme ultraviolet (XUV) radiation, already used for femtosecond time-resolved spectroscopy in various fields of physics (for a review, see [1]). Accurate temporal characterization of harmonic pulses is essential in such applications. Direct transposition of the techniques used in the infrared (IR) domain to the XUV is challenging: the usual optical tools, like beam splitters and nonlinear crystals, do not exist at short wavelengths, and one needs to reconsider the characterization schemes. Up to now, different techniques have been used to obtain temporal information on individual harmonics, all based on photoelectron spectroscopy and multishot measurements: cross correlation of the harmonic pulse with the generating IR gives an average duration of the XUV, assuming a Gaussian temporal profile [2,3]; the use of an IR pulse shorter than the XUV provides measurement of the XUV chirp, averaged over two consecutive harmonics [4]; finally, frequency-resolved optical gating (FROG) measurements using the IR pulse as a gate have been performed, allowing full reconstruction of the 9th harmonic of the frequency-doubled IR laser, averaged over the measurement duration [5]. In this Letter, we demonstrate the first implementation in the XUV of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction (SPIDER [6]), with an all-optical setup. We perform full temporal characterization of harmonic pulses, showing a negative chirp of the harmonic emission that increases with the order. We measure single-shot harmonic temporal profiles and study the shot-to-shot stability of HHG. Finally, we use this high-harmonic SPIDER (HHSPIDER) technique to demonstrate the temporal confinement of harmonic emission by polarization gating.

The SPIDER procedure for the complete determination of an electric field  $E(\omega) = |E(\omega)|e^{i\varphi(\omega)}$  consists of measuring the spectrum of two replicas of the pulse, delayed in time by  $\tau$  and shifted in frequency by  $\Omega$ . The SPIDER signal can be written  $S(\omega) = |E(\omega)|^2 + |E(\omega - \Omega)|^2 + 2|E(\omega)||E(\omega - \Omega)|\cos[\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega) + \omega\tau]$ . The

oscillatory term induces an interference pattern in the spectrum, from which the spectral phase of the initial pulse  $\varphi(\omega)$  can be retrieved with excellent accuracy [6]. In order to apply this method to high harmonics, one must generate two frequency-shifted and time-delayed harmonic pulses. Splitting a harmonic pulse in two replicas is a rather difficult task, but it is possible to avoid this problem by exploiting the coherence of the HHG process: it was demonstrated that, from two delayed replicas of a laser pulse, one generates two identical harmonic pulses, provided that the ionization of the generating medium is kept low [7–9]. One of these pulses has then to be shifted in frequency, which is also very challenging in the XUV. SPIDER methods have been proposed, based on photoionization of a gas target by the XUV pulse in the presence of an IR field [10,11]. In this Letter, we propose an alternative method in which the energy shift is introduced on the generating IR pulses, and subsequently transferred to the harmonic pulses. This all-optical method has the advantage of the experimental simplicity, and benefits from the high resolution achieved by XUV spectrometers compared to the time-of-flight photoelectron ones.

The principle of our experiment is described in Fig. 1. We use the 20 Hz 800 nm LUCA laser system, with a programmable acousto-optic filter in the spectral domain (Dazzler system [12]). The Dazzler tailors the IR pulses to deliver two replicas delayed by  $\tau$ , with a spectral shift  $\delta\omega$ . The pulses are then amplified and focused with a  $f = 1$  m lens in a pulsed argon jet, generating two delayed harmonic pulses shifted in frequency by  $\Omega = q\delta\omega$ ,  $q$  being the harmonic order. The XUV light is analyzed by a spectrometer, consisting of a toroidal mirror and a grating

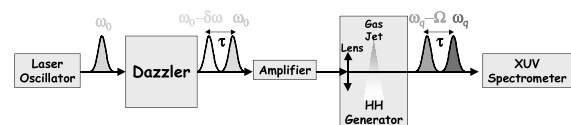


FIG. 1. Principle of the HHSPIDER measurement (see text).

with 700 grooves per mm. Finally the spectrum is measured with micro-channel plates coupled to a CCD camera. The spatial resolution of the imaging device is  $22\text{ }\mu\text{m}$ , resulting in a spectral resolution of  $0.01\text{ nm}$  ( $3.5 \times 10^{12}\text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$ ) at  $73\text{ nm}$  (harmonic 11).

General considerations on optical pulse characterization show that it is necessary to use a time nonstationary filtering in order to obtain temporal information on a *given input pulse* [13]. In our setup, all elements are stationary and linear, but the two IR pulses delivered by the Dazzler are not related to each other by a stationary transformation. We directly generate the two replicas needed for the characterization instead of transforming an input pulse.

The first step of the measurement procedure consists in generating two delayed identical harmonic pulses. The range of delays that can be used for SPIDER measurements is set by the spectrometer resolution  $d\omega$  and by the harmonic spectral width  $\Delta\omega$  [14]. For harmonic 11, a typical spectral width of  $2 \times 10^{14}\text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$  sets a lower limit  $4\pi/\Delta\omega = 60\text{ fs}$  in order to have enough fringes in the spectrum. On the other hand, the fringes can be correctly resolved if  $\tau < \pi/d\omega = 900\text{ fs}$ . The Dazzler allows us to create two replicas of the IR pulse with a programmable delay. We checked the accuracy of the programmed delay by measuring it by spectral interferometry in the IR domain. The laser pulses are focused in the jet at  $9 \times 10^{13}\text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Figure 2(a) shows a harmonic 11 spectrum obtained in this configuration with a delay  $\tau = 150\text{ fs}$ , averaged over 40 shots. Before averaging, we checked by single-shot measurements that the fringe position was stable from shot to shot. This means that the phase locking is preserved, i.e., that the phase difference between the two replicas remains constant from one laser shot to the next one. This property illustrates the remarkable stability of the HHG process, and allows us to average spectra without blurring the interference pattern, which is important to

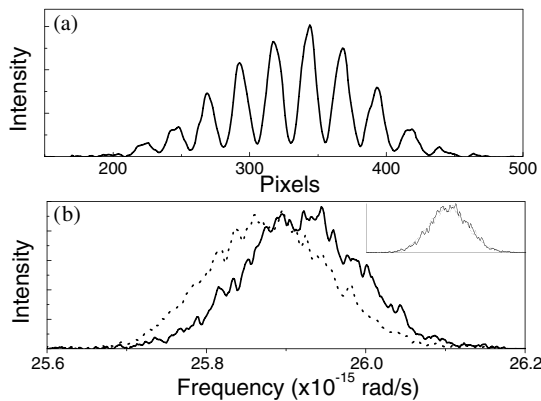


FIG. 2. (a) Harmonic 11 spectrum generated by two identical IR pulses with intensity  $I_{\text{IR}} = 9 \times 10^{13}\text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , delayed by  $\tau = 150\text{ fs}$ . (b) Harmonic 11 spectra, generated by an IR pulse at  $\omega_0$  (solid line), and  $\omega_0 - \delta\omega$  (dashed line). Inset: superposition of the two spectra after translation by  $\Omega = 4.2 \times 10^{13}\text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$ .

enhance the signal-to-noise ratio. Moreover, the excellent contrast of the spectral fringes shows that the ionization of the generating medium is very weak and that the two harmonic pulses are identical, as demonstrated in previous studies [7–9]. This result also offers the opportunity to perform a precise calibration of our XUV spectrometer, which is a key point for the accuracy of SPIDER measurements [15]: the interfringe can be calculated from the programmed delay, and then used to calibrate the frequency around the harmonic central frequency.

As a second step, one of the harmonic pulses has to be spectrally shifted by  $\Omega$ . This quantity must satisfy the Whittaker-Shannon criterion [14]: stating that the harmonic pulse is contained within a time interval  $T = 100\text{ fs}$  imposes  $\Omega < 2\pi/T = 6.3 \times 10^{13}\text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$ . The Dazzler is set to deliver an approximately square IR spectrum. Additional filters can be programmed to select two parts in this square, identical but shifted by a quantity  $\delta\omega$ . The shift between the two IR pulses is transferred in the HHG process to the harmonic frequencies, resulting in the generation of two identical harmonic spectra shifted by  $\Omega = q\delta\omega$ . Figure 2(b) presents the spectra of harmonic 11 consecutively generated by two shifted IR pulses. In order to measure the spectral shift, we translate numerically one of the spectra until it coincides with the second one [inset in Fig. 2(b)]. The spectral profiles are identical when superimposed, which shows that the Dazzler makes it possible to produce two spectrally shifted identical harmonic pulses. The value of the shift  $\Omega$  is given by the magnitude of the translation, and is  $4.2 \times 10^{13}\text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$  in that case. This parameter will be used in the SPIDER algorithm for the reconstruction of the spectral phase.

Once these two calibration steps have been carried out, one can proceed with the measurement of the SPIDER spectrum. The Dazzler is set to deliver the two spectrally shifted pulses, delayed by  $\tau = 150\text{ fs}$ . Figure 3(a) presents a spectrum averaged over 40 shots, with a calibrated frequency axis. The delay  $\tau$  and shift  $\Omega$  being known, the SPIDER algorithm can be applied and provides the harmonic spectral phase [Fig. 3(b)]. The retrieved phase is mainly quadratic, but higher order terms are also present. The temporal harmonic field can be calculated by Fourier transform of the complex spectrum [Fig. 3(c)]. The harmonic pulse is  $22\text{ fs}$  long (FWHM), 1.4 times the Fourier-limit, with a quadratic temporal phase corresponding to a negative linear chirp. A quadratic fit of the phase gives a chirp rate  $b = -4.8 \times 10^{27}\text{ s}^{-2}$ , with a relative uncertainty of 5%. The temporal profile of the generating pulse is also measured with a conventional IR SPIDER. The pulse has a duration  $\tau_{\text{IR}} = 50\text{ fs}$  and a flat phase. The relative durations of the harmonic and generating pulses correspond to an effective order of nonlinearity of 5, which is consistent with what is expected for plateau harmonics [16]. In order to test the reliability of our measurement technique, we characterized harmonic 11 under the same

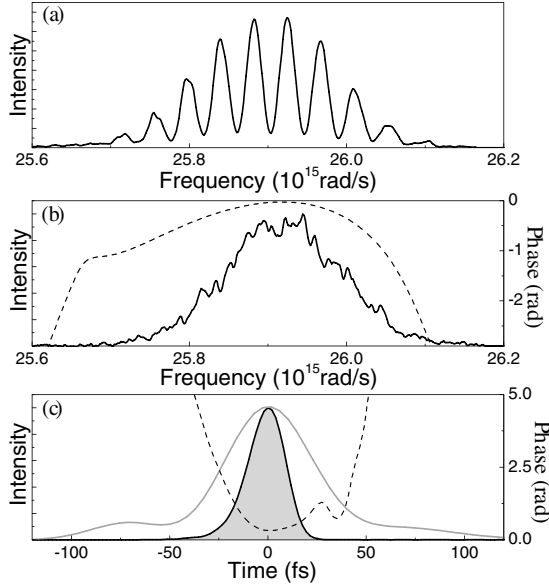


FIG. 3. (a) SPIDER spectrum of harmonic 11 generated at  $I_{\text{IR}} = 9 \times 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , obtained with  $\tau = 150$  fs and  $\Omega = 4.2 \times 10^{13} \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$ . (b) Harmonic 11 spectrum (solid line) and spectral phase (dashed line) retrieved from the SPIDER measurement. (c) Temporal intensity (gray filled) and phase (dashed line) obtained by Fourier transform of the complex spectrum. The gray solid line shows the generating IR pulse intensity obtained by conventional SPIDER measurement.

generating conditions but with different values of the delay  $\tau$  programmed on the Dazzler (between 150 and 350 fs). We found very similar temporal profiles, proving that the measurement procedure is robust and that the frequency calibration is correct [15].

The harmonic chirp is a consequence of the intensity dependence of the atomic dipole phase [17]. Simulations of the dipole moment have shown that this phase can be written as  $\varphi_q = -\alpha_q I_{\text{IR}}$ , where  $I_{\text{IR}}$  is the laser intensity and  $\alpha_q$  a coefficient characteristic of the electron quantum path leading to the XUV emission [18]. For the short quantum path,  $\alpha_q$  increases with the harmonic order, from 0 to  $14 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  in the cutoff. For the long quantum path,  $\alpha_q$  is larger and decreases from  $28 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  to  $14 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  [19]. In the case of a Gaussian laser pulse, the harmonic dipole phase  $\varphi_q$  is quadratic around the maximum of the IR pulse, leading to a negative chirp rate  $b_q$  related to  $\alpha_q$  by  $\alpha_q = -\tau_{\text{IR}}^2 b_q / 8 \ln(2) I_{\text{IR}}$ . Our measurement gives  $\alpha_{11} = 2.4 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ . We performed HHSPIDER measurements of consecutive harmonics under the same generating conditions, and found  $\alpha_{13} = 4.0 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ ,  $\alpha_{15} = 5.1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ , and  $\alpha_{17} = 5.1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ . Both the order of magnitude and the dependence on harmonic order of the measured  $\alpha_q$  agree with the simulations for the short quantum path, indicating that in our experiment, its contribution was macroscopically selected [18].

The measurements performed up to now were averaged over a few tens of shots in order to increase the signal-to-noise ratio. Our setup also allows us to record single-shot HHSPIDER spectra. The fluctuations of the laser intensity are expected to induce not only fluctuations of the harmonic spectral phase, but also of the spectral amplitudes. Consequently, the harmonic spectrum associated to each single-shot measurement must be retrieved. We used an extended version of the SPIDER algorithm which reconstructs both the spectral amplitude and phase from the SPIDER spectrum [20]. The reconstructed temporal profiles for 10 consecutive harmonic shots are presented in Fig. 4, with the same generating conditions as in Fig. 3. We observe slight fluctuations of the pulse profile. The duration varies between 16.4 fs and 21.6 fs, with an average value of  $19.2 \pm 1.4$  fs. The shot-to-shot stability is remarkably good, considering that the laser intensity fluctuations are 3% rms and that HHG is a very nonlinear process. This stability shows the possibility to perform spectral interferometry with a reference pulse, extending the HHSPIDER to cases where the generating medium is strongly ionized: first, a reference pulse generated in the low ionization regime should be characterized by HHSPIDER; then the Dazzler would be set to deliver two delayed pulses, the first being the reference, and the second the more intense one. The spectral phase of the harmonics generated by the latter could then be retrieved from the interference pattern [21].

Single-shot measurements can be used to reduce the harmonic pulse duration, or more generally to perform harmonic pulse shaping by changing the generating conditions and monitoring in real time the effect on the harmonic field. For instance, the Dazzler can be programmed to deliver IR pulses with a nonflat spectral phase, whose effect on the harmonic temporal profile can be studied using genetic algorithms [22]. Such techniques should lead to significant shortening of harmonic pulse duration.

The harmonic pulse duration can also be reduced by exploiting the strong sensitivity of harmonic emission on ellipticity (for a review, see [23]). In our experiment, we implemented a setup proposed in [24,25]. We use a birefringent crystal to create two orthogonally polarized replicas of the IR pulse, delayed by 50 fs, and a quarter-wave plate whose axes are aligned on those of the crystal. The resulting IR field is linearly polarized only at the time when the two pulses overlap with the same amplitude, and the

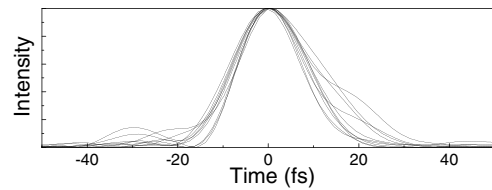


FIG. 4. Temporal profiles from 10 successive single-shot HHSPIDER measurements of harmonic 11.

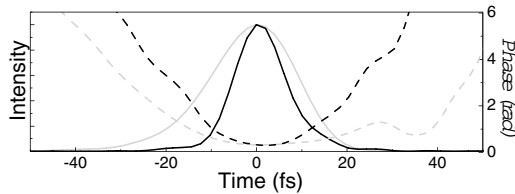


FIG. 5. Temporal confinement of harmonic emission by polarization gating. The harmonic 11 temporal intensity (solid line) and phase (dashed line) is measured without (gray) and with (black) temporal gating.

ellipticity increases rapidly around this instant. Since HHG efficiency dramatically drops when the laser ellipticity increases, the emission is confined in a polarization time gate.

In order to test the efficiency of this technique, we performed HHSPIDER measurements of harmonic 11 with the time gate. The laser intensity was  $1.3 \times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ , and the delay used in the HHSPIDER was increased to 250 fs, so that the laser pulses would not overlap when the gate was used. The retrieved harmonic temporal profile shows that the gating reduces the pulse duration by a factor 1.7, from about 22 to 13 fs FWHM (Fig. 5). A spectral broadening of a factor of 2 is also associated with the gating, and the chirp rate is increased by a factor of 2. This is consistent with the observations reported in [26]. This measurement is a direct proof of the efficiency of the polarization gating technique, and opens the route to the real-time optimization of pulse duration.

In conclusion, we have proposed and demonstrated a new technique for the full temporal characterization of high-harmonic pulses. The implementation is easy, since it is based on an all-optical setup. We have shown that it could be used both for characterizing the generation mechanism, and in the perspective of reducing pulse duration. Using shorter laser pulses, this technique could be extended to the attosecond regime: the harmonics would spectrally overlap, allowing continuous measurement of the phase over several harmonics and complete characterization of attosecond fields. This would be particularly interesting for attosecond spectroscopy [27]. Last, the possibility of performing single-shot measurements opens the way to the real-time temporal optimization of harmonic emission by retroacting on the generating conditions.

We thank P. Agostini and I. Walmsley for fruitful discussions, and acknowledge the support of the European Community's Human Potential Program under contract no. MRTN-CT-2003-505138 (XTRA).

*Note added.*—Independently from our work, a theoretical proposition of a similar method in the attosecond regime was made [28].

- [1] A. L'Huillier, D. Descamps, A. Johansson, J. Norin, J. Mauritsson, and C.-G. Wahlström, *Eur. Phys. J. D* **26**, 91 (2003).
- [2] J.M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R.C. Constantinescu, H.G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994).
- [3] T.E. Glover, R.W. Schoenlein, A.H. Chin, and C.V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2468 (1996).
- [4] J. Mauritsson *et al.*, *Phys. Rev. A* **70**, 021801(R) (2004).
- [5] T. Sekikawa, T. Kanai, and S. Watanabe, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 103902 (2003).
- [6] C. Iaconis and I.A. Walmsley, *Opt. Lett.* **23**, 792 (1998).
- [7] P. Salières, L. Le Déroff, T. Auguste, P. Monot, P. d'Oliveira, D. Campo, J.-F. Hergott, H. Merdji, and B. Carré, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5483 (1999).
- [8] M. Bellini, S. Cavalieri, C. Corsi, and M. Materazzi, *Opt. Lett.* **26**, 1010 (2001).
- [9] J.F. Hergott *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 171 (2003).
- [10] F. Quéré, J. Itatani, G.L. Yudin, and P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 073902 (2003).
- [11] J. Mauritsson, R. López-Martens, A. L'Huillier, and K.J. Schafer, *Opt. Lett.* **28**, 2393 (2003).
- [12] P. Tournois, *Opt. Commun.* **140**, 245 (1997).
- [13] V. Wong and I.A. Walmsley, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 1491 (1995).
- [14] M.E. Anderson, L.E.E. de Araujo, E.M. Kosik, I.A. Walmsley, *Appl. Phys. B* **70**, S85 (2000).
- [15] C. Dorrer, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 1160 (1999).
- [16] C.G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salières, Ph. Balcou and A. L'Huillier, *Phys. Rev. A* **48**, 4709 (1993).
- [17] P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- [18] P. Salières *et al.*, *Science* **292**, 902 (2001).
- [19] M.B. Gaarde and K.J. Schafer, *Phys. Rev. A* **65**, 031406(R) (2002).
- [20] A. Müller and M. Laubscher, *Opt. Lett.* **26**, 1915 (2001).
- [21] L. Lepetit, G. Cheriaux, and M. Joffe, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2497 (1995).
- [22] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I.P. Christov, M.M. Murnane and H.C. Kapteyn, *Nature (London)* **406**, 164 (2000).
- [23] P. Agostini and L.F. DiMauro, *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813 (2004).
- [24] E. Constant, Ph.D. thesis, University of Sherbrooke, Canada (1997).
- [25] V.T. Platonenko and V.V. Strelkov, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 435 (1999).
- [26] R. López-Martens, J. Mauritsson, P. Johansson, A. L'Huillier, O. Tcherbakoff, A. Zaïr, E. Mével, and E. Constant, *Phys. Rev. A* **69**, 053811 (2004).
- [27] M. Drescher *et al.*, *Nature (London)* **419**, 803 (2002).
- [28] E. Cormier, I.A. Walmsley, E.M. Kosik, A.S. Wyatt, L. Corner, and L.F. DiMauro, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 033905 (2005).

## References and Notes

1. C. Doppler, *Abh. Koniglichen Bohmischen Ges. Wiss.* **2**, 465 (1843).
2. C. H. Papas, *Theory of Electromagnetic Wave Propagation* (McGraw-Hill, New York, 1965).
3. I. Frank, *J. Phys. USSR* **7**, 49 (1943).
4. K. S. H. Lee, *Radio Sci.* **3**, 1098 (1968).
5. M. Yu. Sorokin, *Radiophys. Quantum Elect.* **36**, 410 (1993).
6. K. S. H. Lee, C. H. Papas, *J. Math. Phys.* **42**, 189 (1963).
7. K. A. Barsukov, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **7**, 112 (1962).
8. K. A. Barsukov, A. A. Kolomenskii, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **4**, 868 (1959).
9. N. Engheta, A. R. Mikelson, C. H. Papas, *IEEE Trans. Antennas Propag.* **AP-28**, 512 (1980).
10. N. Engheta, *Recent Advances in Electromagnetic Theory* (Springer-Verlag, New York, 1990).
11. Y. Ben-Shimol, D. Censor, *Radio Sci.* **33**, 463 (1998).
12. V. G. Veslago, *Sov. Phys. Usp.* **10**, 509 (1968).
13. D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, S. Schultz, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4184 (2000).
14. J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966 (2000).
15. E. J. Reed, M. Soljacic, J. D. Joannopoulos, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 133901 (2003).
16. A. M. Belyantsev, A. B. Kozyrev, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **45**, 747 (2000).
17. A. M. Belyantsev, A. B. Kozyrev, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **47**, 1477 (2002).
18. A. M. Belyantsev, A. I. Dubnev, S. L. Klimin, Yu. A. Koblelev, A. B. Kozyrev, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **40**, 820 (1995).
19. Materials and methods are available as supporting material on Science Online.
20. G. I. Freidman, *Izv. VUZov. Radiofiz.* **6**, 536 (1963).
21. I. G. Kataev, *Electromagnetic Shock Waves* (Illi, London, 1963).
22. Ya. E. Daume, G. I. Freidman, *Sov. Phys. JETP* **16**, 778 (1963).
23. A. K. Iyer, G. V. Eleftheriades, *IEEE MTT-S Int. Microwave Symp. Dig.* **2**, 1067 (2002).
24. G. V. Eleftheriades, A. K. Iyer, P. C. Kremer, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **50**, 2702 (2002).
25. E. J. Reed, M. Soljacic, J. D. Joannopoulos, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 203904 (2003).
26. A. M. Belyantsev, A. B. Kozyrev, *Int. J. Infrared Millimeter Waves* **19**, 1571 (1998).
27. We thank A. M. Belyantsev and A. B. Kozyrev for discussions on nonlinear transmission lines; J. B. Pendry for advice on wave propagation in complex media; N. A. Brownjohn, J. E. Dolan, S. J. Scott, and C. R. Spikings for technical assistance; and C. French for producing the figures. This work was supported by the BAE Systems Advanced Technology Centre Long-Look Programme.

## Supporting Online Material

www.sciencemag.org/cgi/content/full/302/5650/1537/DC1

Materials and Methods

Figs. S1 and S2

Reference

18 July 2003; accepted 13 October 2003

## Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays

Y. Mairesse,<sup>1</sup> A. de Bohan,<sup>1</sup> L. J. Frasinski,<sup>2</sup> H. Merdji,<sup>1</sup> L. C. Dinu,<sup>3</sup> P. Monchicourt,<sup>1</sup> P. Breger,<sup>1</sup> M. Kovačev,<sup>1</sup> R. Taïeb,<sup>4</sup> B. Carré,<sup>1</sup> H. G. Muller,<sup>3</sup> P. Agostini,<sup>1</sup> P. Salières<sup>1</sup>

Subfemtosecond light pulses can be obtained by superposing several high harmonics of an intense laser pulse. Provided that the harmonics are emitted simultaneously, increasing their number should result in shorter pulses. However, we found that the high harmonics were not synchronized on an attosecond time scale, thus setting a lower limit to the achievable x-ray pulse duration. We showed that the synchronization could be improved considerably by controlling the underlying ultrafast electron dynamics, to provide pulses of 130 attoseconds in duration. We discuss the possibility of achieving even shorter pulses, which would allow us to track fast electron processes in matter.

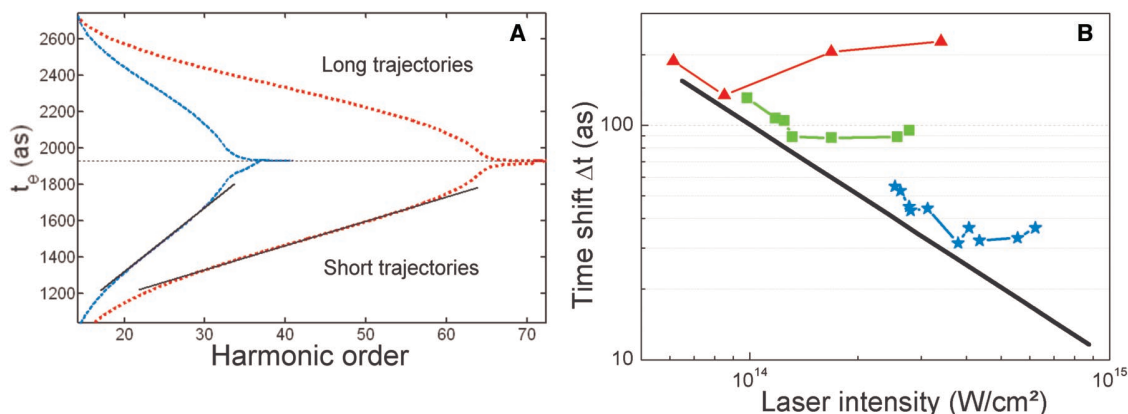
The generation of soft x-ray, subfemtosecond light pulses is providing new opportunities for time-resolved spectroscopy (1). With the recent production of pulses as short as 650 attoseconds (as) (2) and trains of 250-as pulses (3), the time-resolved dynamics of particles in the attosecond ( $10^{-18}$  s) regime is becoming a reality. The key method of syn-

thesizing attosecond pulses (4, 5) is the generation, in rare gases, of high harmonics of an infrared femtosecond laser pulse (6, 7). Such coherent harmonics can be generated to high orders (300 or more) (8, 9), covering a spectral bandwidth of hundreds of electron volts. The physical origin of the harmonic emission can be described by a semi-classical three-

step model (10, 11). First, at some initial time  $t_i$ , close to the peak of the laser electric field, an electron wavepacket tunnels through the potential barrier formed by the combined Coulomb and laser fields; next, it oscillates almost freely in the laser field, gaining kinetic energy; finally, this energy is converted into a high-energy photon through recombination with the parent ion at time  $t_r$ . An infrared pulse lasting a few cycles allows the production of a single x-ray burst with a continuous spectrum (12, 13). Using a multicycle (50-fs) laser pulse, this sequence is repeated every half cycle of the laser optical field, leading to periodic emission of light bursts with a discrete spectrum (14, 15) containing only odd multiples of the laser frequency:  $\omega_q = q\omega_0$

<sup>1</sup>Commissariat à l'Energie Atomique, DRECAM/SPAM, Centre d'Etudes de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France. <sup>2</sup>The University of Reading, J. J. Thomson Physical Laboratory, Whiteknights, Post Office Box 220, Reading RG6 6AF, UK. <sup>3</sup>FOM-Institute for Atomic and Molecular Physics, Kruislaan 407, 1098 SJ Amsterdam, Netherlands. <sup>4</sup>Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement, Université Pierre et Marie Curie, 11 Rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France.

**Fig. 1.** Intensity dependence of the time shift. (A) Calculated emission time as a function of harmonic order for  $I_{\text{IR}} = 1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (blue dashed line) and  $I_{\text{IR}} = 3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (red dotted line). The laser field, whose period is 2667 as, is maximum at  $t = 0$ . The time shifts are given by the slopes of the tangents to the curves (black solid lines). (B) Time shift as a function of the laser intensity. Single-atom predictions (black line) and experimental values using different generating gases [xenon (red triangles), argon (green squares), and neon (blue stars)] are shown.





(where  $\omega_0$  is the fundamental laser angular frequency, and  $q$  is the harmonic order). The temporal profile  $I(t)$  of the intensity of the emitted pulses can be determined from knowledge of the spectral amplitudes ( $A_q$ ) and phases [ $\varphi(\omega_q)$ ] of the  $N$  contributing harmonic fields through the expression

$$I(t) = \left| \sum_N A_q \exp[-i\omega_q t + i\varphi(\omega_q)] \right|^2$$

The spectral phase  $\varphi(\omega_q)$ , which is sampled only at the harmonic frequencies, reflects their synchronization during the emission process. A linear relationship,  $\varphi(\omega_q) = q\omega_0 t_e$ , with  $t_e$  (harmonic emission time) independent of  $q$ , results in so-called Fourier-limited pulses of duration  $\tau_{FL} \propto 1/N$ , which is the shortest duration allowed by the bandwidth. In that situation, all harmonics are emitted at the same time,  $t_e = \frac{\partial \varphi}{\partial \omega} = \frac{\Delta \varphi}{2\omega_0}$  ( $\Delta \varphi$  is the spectral phase difference between two consecutive harmonics). Because of the

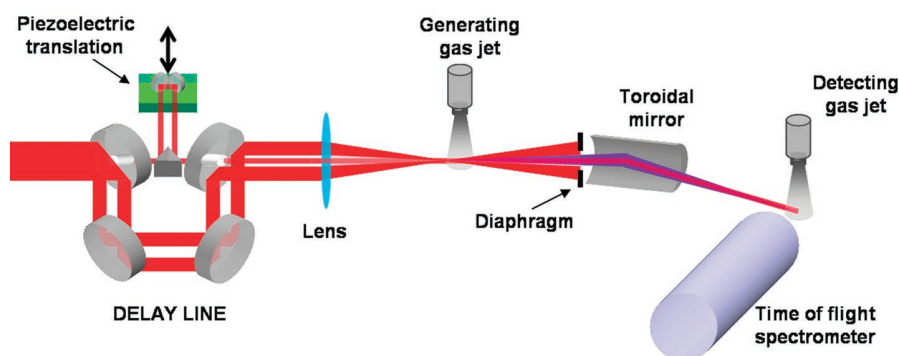
uncertainty principle, one cannot define an instant associated with a single energy: The emission time of harmonic  $q$  applies to a group of harmonics centred on  $\omega_q$ ; that is, the group delay. The first spectral phase measurements of five consecutive harmonics generated in argon revealed a near-linear phase relationship, corresponding to a train of 250- as pulses (3). The synthesis of much shorter bursts demands that this linearity hold for a much wider spectral range.

The generation of attosecond pulses is best understood in terms of the quantum-mechanical theory developed in the Feynman's path integral formalism (16, 17), which recovers the semiclassical picture: The emission of a given harmonic is associated with at least two quantum orbits that are complex electron trajectories labeled in terms of their short or long return times,  $t_r - t_i$ . We find that the real part of their recombination times determines the values for  $t_e$  (18). The semiclassical calculations reveal

that over a large spectral range,  $t_e$  varies quasi-linearly with  $\omega_q$  (linear chirp), with a positive slope for the branch corresponding to the short trajectories (that is, the higher harmonics are emitted after the lower ones) and a negative slope for the long trajectory branch (Fig. 1A). This lack of synchronization is a direct consequence of the temporal broadening of the electron wavepacket, and can be quantified by the time shift between emissions of two consecutive harmonics,  $q$  and  $q + 2$ :  $\Delta t_e(\omega_{q+1}) = t_e(\omega_{q+2}) - t_e(\omega_q)$ . This temporal drift in harmonic emission has dramatic effects on the duration of the emitted attosecond pulses: Selecting the entire available spectral range no longer provides the shortest possible pulses. The value of this time shift determines the minimum pulse duration  $\tau_{opt}$ . Assuming Gaussian pulses with linear chirp, it can be shown analytically (and numerical calculations with a discrete harmonic spectrum confirm this) that  $\tau_{opt} \propto \sqrt{\Delta t_e}$  at the optimum number of harmonics  $N_{opt} \propto 1/\sqrt{\Delta t_e}$ . Our calculations also show that  $\Delta t_e \propto \omega_0/U_p$ , where  $U_p = \frac{I_{IR}}{4\omega_0^2}$  is the

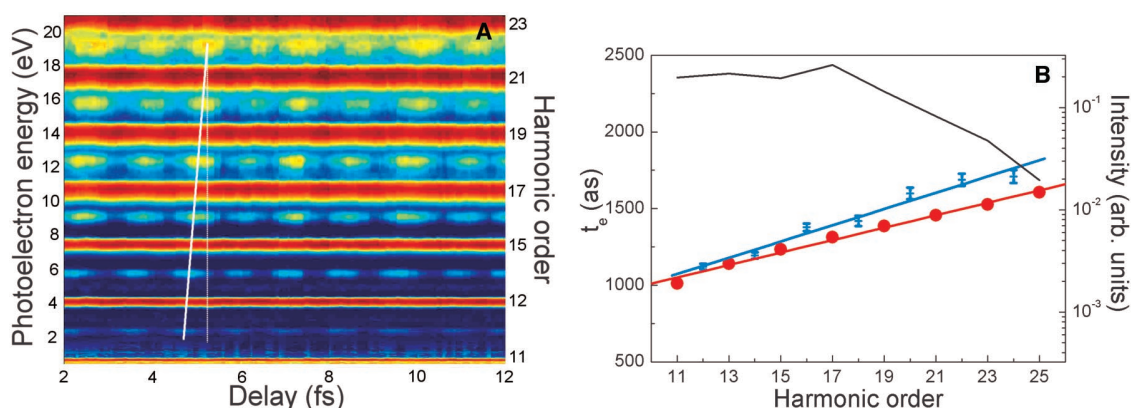
ponderomotive energy in atomic units ( $I_{IR}$  is laser intensity) and could thus be minimized through the generating conditions. One would expect the generation of (at least) two bursts per half laser period because of the short and long trajectories (19). However, in some harmonic generating conditions, the macroscopic response is predicted to contain only the short-trajectory contributions, resulting in regular harmonic phases (19, 20).

The measurement of the relative harmonic phases can be performed through two-photon ionization (3, 21). Photoelectron spectra obtained by superposing the harmonic pulse and a weak infrared field consist of peaks corresponding to the harmonic energies and of sidebands located in between. When the delay between harmonic and infrared fields varies, the sideband amplitudes oscill-



**Fig. 2.** Experimental setup. The 50-mJ, 50-fs, 800-nm Ti:sapphire laser beam is spatially separated into two parts: The outer annular part generates the high harmonics, whereas the small inner part, the dressing beam, contributes to the generation of the sidebands. Their delay is controlled by a piezoelectric translator with 10-nm accuracy. This setup allows independent control of the diameter, intensity, polarization, and even spectral phase of each beam. The beams are focused before the 1-mm diameter, 50-torr, pulsed gas jet using a lens with a focal length of 1 m. The harmonics emitted on the axis and the dressing beam are refocused in a detecting jet by a Pt-coated toroidal mirror with broadband reflectivity, whereas the annular beam is blocked by a diaphragm. Photoelectrons are detected with a magnetic bottle time-of-flight spectrometer.

**Fig. 3.** Measurement of the emission time in argon at  $I_{IR} = 1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. (A) Photoelectron spectrum as a function of delay. Each spectrum is an average over 100 laser shots. For clarity, the spectra have been normalized. The color scale is nonlinear, and the apparent spectral widths are therefore not significant. The thick white line guides the eye to the location of the sideband maxima; the thin line is vertical. (B) Harmonic emission time: measurements (blue crosses with error bars) and single-atom predictions (red dots). Linear fits (blue and red lines) give the time-shift values  $\Delta t_e^{exp} = 106 \pm 8$  as and  $\Delta t_e^{th} = 81 \pm 3$  as. The black line represents the measured harmonic intensity. arb., arbitrary.



## REPORTS

late. The phase of this oscillation directly provides the phase difference between two consecutive harmonics and thus the harmonic emission time:  $\Phi_{\text{SB}}(\omega_{q+1}) = \varphi(\omega_{q+2}) - \varphi(\omega_q) - \Delta\varphi_{q+1}^{\text{at}} \approx 2\omega_0 t_c(\omega_{q+1})$ , because  $\Delta\varphi_{q+1}^{\text{at}}$  (the atomic phase term) is only a small correction (18).

Our experimental setup allows a broadband harmonic analysis and fine-tuning of the measurement parameters (Fig. 2). The photoelectron spectra obtained by using argon as a generating and detecting gas are displayed as a function of delay for  $I_{\text{IR}} = 1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (Fig. 3A). Macroscopic selection of the short trajectory contributions (19, 20) was achieved through phase matching by focusing the laser beam ahead of the gas jet (22, 23). The dephasing of the sideband oscillations as a function of order is a direct indication of the lack of synchronization in the harmonic emission, which is confirmed by the plot of the emission time (Fig. 3B). A linear dependence is obtained, corresponding to a time shift  $\Delta t_c^{\text{exp}} = 106 \pm 8$  as.

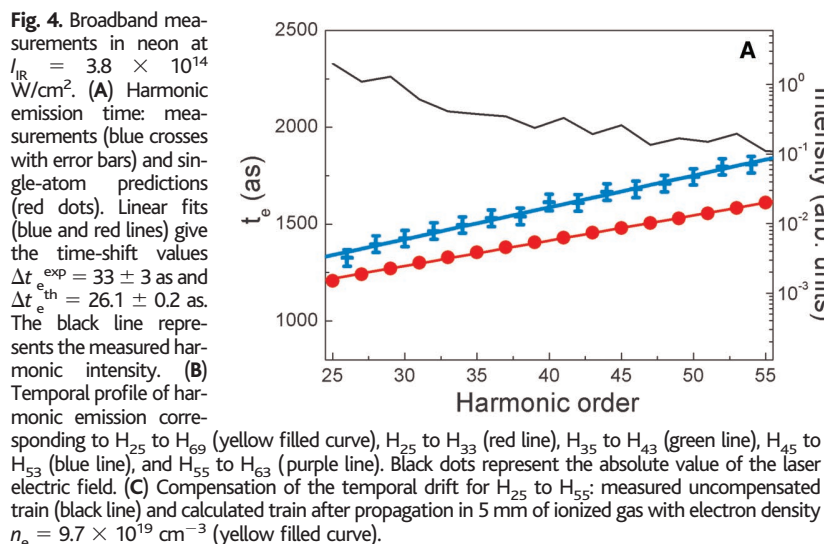
We carried out a thorough study of the time shift as a function of laser intensity and generating gas (Fig. 1B). In all cases, the synchronization improves when the laser intensity is increased up to the ionization intensity of the generating medium. Agreement with the predictions of our theoretical analysis is good over a large range of intensity, despite a slight upshift of the experimental data. In good phase-matching conditions, the macroscopic response is indeed predicted to be very close to the single-atom one restricted to the selected

trajectories, and we checked that our time shift calculations agree quantitatively with the linear chirp resulting from a full macroscopic study (20). The single-atom response provides a limit that can be experimentally approached by optimizing the generating conditions, but never reached. The experimental curves deviate from the  $1/I_{\text{IR}}$  dependence close to the saturation intensity of each gas: When the medium becomes ionized, we observe strongly perturbed phase relationships, because propagation effects (in particular phase mismatch) become dominant.

The minimum time shift is obtained by using neon as the generating gas. Its spectrum extends to much higher orders, allowing a broadband study of the harmonic synchronization with helium as the detecting gas (its ionization cross-section is flatter). The emission times measured at  $I_{\text{IR}} = 3.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> indicate a good linearity from  $H_{25}$  to  $H_{55}$ , with  $\Delta t_c^{\text{exp}} = 33 \pm 3$  as, close to the single-atom prediction  $\Delta t_c^{\text{th}} = 26.1 \pm 0.2$  as (Fig. 4A). The temporal profile of harmonic emission, as well as its timing with respect to the generating laser field, can be reconstructed from the measured spectral amplitudes and phases (Fig. 4B) (3, 24). When the temporal profile of groups of five consecutive harmonics is plotted, their different emission times are clearly evidenced: The time separating two groups is  $5\Delta t_c \approx 150$  as. Low harmonics are emitted close to the peak of the laser field, with the highest harmonics being emitted close to zero field. This temporal drift results in a strong distortion of the pulse correspond-

ing to the full spectral bandwidth ( $H_{25}$  to  $H_{69}$ ), and in a temporal broadening to 150 as, which is three times the Fourier limit. The minimum pulse duration imposed by  $\Delta t_c$  is obtained by selecting  $N_{\text{opt}} = 11$  harmonics, resulting in close-to-Fourier-limited pulses of duration  $\tau_{\text{opt}} = 130$  as.

This measurement constitutes a direct observation of the electron return times with a temporal resolution of 50 as, set by the available spectral width. In that respect, it can be considered as an unambiguous validation of the three-step model. Moreover, deconvolution from the recombination probability provides a characterization of the temporal shape of the recombining high-energy electron wavepacket, which is crucial for its direct use as an attosecond probe of molecular dynamics (25, 26). It opens up new avenues for generating even shorter pulses. Increasing the saturation intensity by using ultrashort laser pulses and helium as the generating gas should help to improve the harmonic synchronization. Another possibility is to increase the laser wavelength using currently developed mid-infrared lasers (27), because the time shift varies as  $\omega_0^{-3}$ . Finally, ultrashort pulse durations could be obtained by optical compression techniques: The temporal drift can be compensated by propagation in a medium or optical system where the high frequencies travel faster than the low ones. From that perspective, our accurate knowledge of the phase relationship is essential. One could, for instance, use a "plasma compressor," because free electrons induce a negative group velocity dispersion. In the case presented in



# Molecular Memories That Survive Silicon Device Processing and Real-World Operation

Zhiming Liu,<sup>1</sup> Amir A. Yasseri,<sup>1</sup> Jonathan S. Lindsey,<sup>2</sup>  
David F. Bocian<sup>1\*</sup>

If molecular components are to be used as functional elements in place of the semiconductor-based devices present in conventional microcircuitry, they must compete with semiconductors under the extreme conditions required for processing and operating a practical device. Herein, we demonstrate that porphyrin-based molecules bound to Si(100), which exhibit redox behavior useful for information storage, can meet this challenge. These molecular media in an inert atmosphere are stable under extremes of temperature (400°C) for extended periods (approaching 1 hour) and do not degrade under large numbers of read-write cycles ( $10^{12}$ ).

## References and Notes

- M. Drescher *et al.*, *Nature* **419**, 803 (2002).
- M. Hentschel *et al.*, *Nature* **414**, 509 (2001).
- P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001).
- Gy. Farkas, Cs. Toth, *Phys. Lett. A* **168**, 447 (1992).
- S. E. Harris, J. J. Macklin, T. W. Hänsch, *Opt. Commun.* **100**, 487 (1993).
- T. Brabec, F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- P. Salières, A. L'Huillier, Ph. Antoine, M. Lewenstein, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **41**, 83 (1999).
- Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2967 (1997).
- M. Schnürer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3236 (1998).
- P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- I. P. Christov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1251 (1997).
- A. Baltuska *et al.*, *Nature* **421**, 611 (2003).
- P. Salières, Ph. Antoine, A. de Bohan, M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5544 (1998).
- R. Bartels *et al.*, *Nature* **406**, 164 (2000).
- P. Salières *et al.*, *Science* **292**, 902 (2001).
- M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- Materials and methods are available as supporting material on Science Online.
- Ph. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1234 (1996).
- M. Gaarde, K. J. Schafer, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 213901 (2002).
- V. Vénier, R. Taïeb, A. Maquet, *Phys. Rev. A* **54**, 721 (1996).
- P. Salières, A. L'Huillier, M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- Ph. Balcou, P. Salières, A. L'Huillier, M. Lewenstein, *Phys. Rev. A* **55**, 3204 (1997).
- L. C. Dinu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 063901 (2003).
- H. Niikura *et al.*, *Nature* **421**, 917 (2002).
- H. Niikura *et al.*, *Nature* **417**, 826 (2003).
- B. Sheehy *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5270 (1999).
- P. B. Corkum, N. H. Burnett, M. Y. Ivanov, *Opt. Lett.* **19**, 1870 (1994).
- Ph. Antoine *et al.*, *Phys. Rev. A* **56**, 4960 (1997).
- We thank O. Gobert, P. Meynadier, and M. Perdrix for their help in the experiment and K. Codling and F. Quéré for careful reading of the manuscript. This work was partially supported by the European Community's Human Potential Programme under contracts HPRN-CT-2000-00133, ATTO and HPRI-CT-2002-00191, SLIC. H.G.M. and L.C.D. are also supported by FOM (Fundamental Research on Matter), which is subsidized by the NWO (Netherlands Organization for the Advancement of Research).

## Supporting Online Material

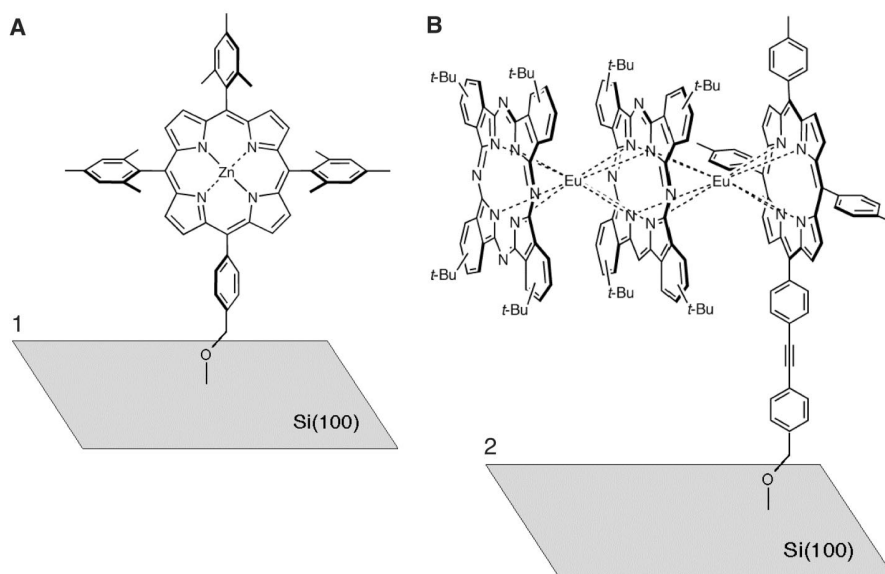
www.sciencemag.org/cgi/content/full/302/5650/1540/DC1

Materials and Methods

Fig. S1

References

11 August 2003; accepted 14 October 2003



**Fig. 1.** Structure of the Si-tethered porphyrins. The monomeric porphyrin **1** (A) has two accessible cationic states below 1.6 V (7), whereas the triple decker **2** (B) has four states below 1.6 V (8). The availability of multiple redox states affords the possibility of multibit information storage.

## Optimization of Attosecond Pulse Generation

Y. Mairesse,<sup>1</sup> A. de Bohan,<sup>1</sup> L. J. Frasinski,<sup>2</sup> H. Merdji,<sup>1</sup> L. C. Dinu,<sup>3</sup> P. Monchicourt,<sup>1</sup> P. Breger,<sup>1</sup> M. Kovačev,<sup>1</sup>  
T. Auguste,<sup>1</sup> B. Carré,<sup>1</sup> H. G. Muller,<sup>3</sup> P. Agostini,<sup>1</sup> and P. Salières<sup>1</sup>

<sup>1</sup>CEA/DSM/DRECAM/SPAM, bât. 522, Centre d'Etudes de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>The University of Reading, J. J. Thomson Physical Laboratory, Whiteknights, P.O. Box 220, Reading RG6 6AF, United Kingdom

<sup>3</sup>FOM-Institute for Atomic and Molecular Physics, Kruislaan 407, 1098 SJ Amsterdam, Netherlands

(Received 3 May 2004; published 13 October 2004)

The generation of attosecond pulses by superposition of high harmonics relies on their synchronization in the emission. Our experiments in the low-order, plateau, and cutoff regions of the spectrum reveal different regimes in the electron dynamics determining the synchronization quality. The shortest pulses are obtained by combining a spectral filtering of harmonics from the end of the plateau and the cutoff, and a far-field spatial filtering that selects a single electron quantum path contribution to the emission. This method applies to isolated pulses as well as pulse trains.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.163901

PACS numbers: 42.65.Ky, 32.80.Wr, 42.65.Re

The strongly nonlinear interaction taking place when an intense infrared (IR) laser pulse is focused into a rare gas jet results in the coherent emission of extreme ultraviolet (XUV) light [1] with a characteristic spectrum showing a plateau and a sharp cutoff at high energy [2]. This process offers the unique opportunity of generating attosecond pulses, as recently demonstrated by two techniques. First, starting from a few-cycle laser pulse, the highest energy photons are only emitted at the maximum of the laser envelope. The cutoff is then continuous and by spectrally selecting it, one can obtain a single pulse of 250 as duration [3,4]. Second, using a multicycle IR pulse provides a discrete spectrum containing only odd harmonics of the laser frequency. Selecting many harmonics in the plateau results in emission of XUV bursts every half laser period, forming an attosecond pulse train (APT) whose wagons can be as short as 130 as [5,6]. In both cases, the condition for the production of short pulses is a near-linear spectral phase of the XUV radiation. For a discrete spectrum, this means that harmonics must be phase-locked, i.e., synchronized. The phase-locking of harmonics is closely related to the electronic dynamics in the generation process. In the semiclassical “three-step” model [7,8], part of the electron wave packet first tunnels out of the atomic potential lowered by the laser field; it is then driven by the strong IR field in the continuum; finally, it can recombine with the parent ion, emitting a XUV photon whose energy is given by the electron return kinetic energy. The recombination times of the different electron trajectories determine the emission times of the different XUV frequencies, and thus their synchronization.

Recent studies have stressed two main sources of asynchronism that raise important questions for the reliable generation of shorter pulses. First, each harmonic is associated to mainly two (“short” and “long”) electron trajectories that have the same return energy but very different return times. The single-atom response thus

consists of at least two bursts per half laser cycle, which blurs the attosecond structure. Fortunately, the short trajectory contribution can be macroscopically selected by adjusting carefully the phase matching conditions [9]: when the generating laser is focused slightly before the gas jet, the macroscopic temporal profile exhibits a “clean” APT with a single attosecond pulse per half cycle. However, the quality of the APT is predicted to depend critically on the focus/jet relative position [10]. Can we find robust generation conditions where phase-locking will be preserved? Second, even if a trajectory selection is achieved, the short trajectories associated to the different plateau harmonics have different recombination times [6]. This induces a quadratic term in the spectral phase, equivalent to a linear frequency chirp of the attosecond pulses, setting a lower limit to the XUV pulse duration achievable in given generation conditions. Is this chirp also present in the cutoff region, where the electron dynamics is more complex? This would prevent the generation of isolated pulses of 100 as duration.

In this Letter, we perform a thorough study of the phase-locking of high harmonics. We first investigate the influence of the focusing geometry on the generation process. We demonstrate that a good phase-locking can be robustly achieved through quantum path selection by spatially filtering the harmonic radiation. We then study the relative phase of harmonics over the full spectrum. We find that the low harmonics are temporally shifted in emission with respect to the following ones, while harmonics from the cutoff are fully phase-locked.

In our experiments, we performed measurements of the harmonic relative phases based on two-photon two-color photoionization [11], with the same setup as in [6]. Briefly, we use a 20 Hz, 45 fs, up-to-50 mJ, 800 nm laser system. The beam is split into two—outer and inner—components in a delay line. The outer annular part is focused with a lens of 1 m focal length and generates harmonics in a 1 mm thick neon gas jet. The peak laser



intensity is  $4.7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> and the confocal parameter  $b = 23$  mm. The beam is then blocked by a 4 mm diaphragm placed 60 cm after the jet. The harmonic radiation that passes through this diaphragm is refocused by a 70 cm Pt coated toroidal mirror into a target helium jet, in the source volume of a photoelectron time-of-flight spectrometer. The inner circular part of the initial laser beam is focused into the second gas jet with an adjustable delay with respect to the harmonic beam. The photoelectron spectra show main harmonic lines and sidebands induced by the dressing IR beam. The phase of the sideband oscillations resulting from the delay scanning allows retrieving the phase difference between two consecutive harmonics.

For the phase-locking analysis, we select a group of ten harmonics (from 17 to 35) and reconstruct the corresponding APT from the measured amplitudes and spectral phases. The temporal profiles are presented in Fig. 1(a). They are normalized to contain the same energy (short duration is thus associated to high peak value). The

laser focusing appears as a crucial parameter for the production of short bursts. We always obtain a single burst per half period, but its shape dramatically depends on the position  $z$  of the focus with respect to the jet ( $z > 0$  means focusing after the jet). Strongly distorted bursts are observed at large  $z$ , while nice pulses with a minimum duration of 130 as FWHM are measured when focusing slightly before or after the gas jet.

The temporal distortions of the attosecond pulses obtained by superposing  $N$  harmonics can be quantified by introducing the degree of phase-locking [10]

$$\gamma_t = \frac{\int_{\tau_N} dt I_{XUV}(t)}{\int_{T_0/2} dt I_{XUV}(t)}. \quad (1)$$

This factor represents the proportion of XUV energy emitted within  $\tau_N = T_0/(2N)$  during half a laser period  $T_0/2$ . It can be normalized as  $\tilde{\gamma}_t = (\gamma_t - 2\tau_N/T_0)/(\gamma_t^{FT} - 2\tau_N/T_0)$ , where  $\gamma_t^{FT}$  is the value obtained in the case of perfect phase-locking [12]. Figure 1(b) shows the variation of  $\tilde{\gamma}_t^{\text{exp}}$  in our measurements. The phase-locking is good when  $z$  is between  $-0.3b$  and  $0.3b$  (even though it slightly decreases for  $z = 0$ ), and deteriorates at large  $|z|$ . When  $z$  is larger than  $0.4b$ , the harmonic flux becomes too low to be measured. These results can be compared to the macroscopic simulations based on the resolution of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) [10] (blue line). The most striking feature is that the experimental curve is almost symmetric with respect to  $z = 0$ , in contrast with the TDSE calculations. In the latter, the very poor phase-locking obtained for  $z > 0$  is due to the long quantum trajectories contributions that result in the appearance of many bursts per half cycle. This behavior was systematically observed when combining other harmonics or changing the intensity. On the measured temporal profiles, the absence of multiple bursts for  $z > 0$  indicates that the contribution of a single trajectory is selected, even when the laser is focused in or after the jet. This selection is performed thanks to the diaphragm placed after the generating jet. Indeed, in the far-field, the harmonic wave front separates in two regions, due to the different phase characteristics of the two quantum paths: the short trajectory contribution is emitted on-axis, while the long one is much more divergent [13–16]. In our experiment, the far-field diaphragm therefore acts as a spatial filter that selects the contribution of the short trajectory. This is confirmed by the fact that the harmonic spectra (derived from the photoelectron spectra) obtained for  $z > 0$  are very similar to the ones obtained for  $z < 0$ , without any broadening or pedestal as usually observed for the long quantum path [17] [Fig. 1(c)]. In parallel to this experiment, we have performed studies of the spatial profile of harmonic emission in the same focusing geometry [18]. They confirmed that a similar diaphragm aperture eliminates most of the long trajectory contribution.

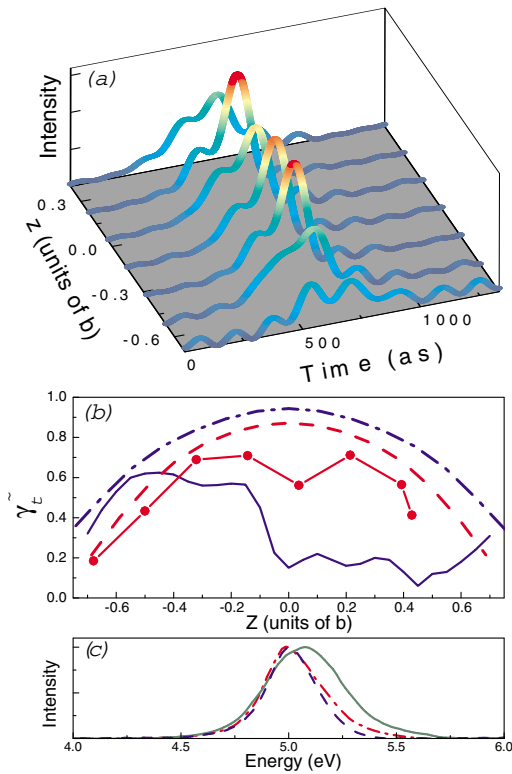


FIG. 1 (color online). (a) Measured (normalized) temporal profiles for 10 harmonics (17 to 35) generated in Ne at  $4.7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (intensity at focus). (b) Normalized phase-locking parameters: measurements  $\tilde{\gamma}_t^{\text{exp}}$  (red dots) and simulations  $\tilde{\gamma}_t^{\text{sl}}$  (red dashed line) at  $4.7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>; TDSE calculations from [10] for harmonics 41 to 59 (blue line) and simulations  $\tilde{\gamma}_t^{\text{sl}}$  (blue dashed-dotted line) at  $6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. (c) Measured normalized spectra for harmonic 19 at  $z = -0.3b$  (red dashed dots), 0 (green line), and  $0.2b$  (blue dashed line).

However, the selection of the short quantum paths does not imply a perfect harmonic phase-locking: in the plateau, the attosecond pulses generated by the short quantum paths are positively chirped, while this chirp is negative for the long ones [6]. In the APT reconstructed from our measurements, the bursts always present a positive chirp (discussed below), which is consistent with the identification of the short trajectory. This chirp is inversely proportional to the generating laser intensity [6]. Consequently, it should increase when the focus is moved away from the gas jet, degrading phase-locking. We evaluated the intensity in the gas jet as a function of the focus position, and calculated the short-path single-atom phase-locking parameter  $\tilde{\gamma}_t^{\text{sgl}}$  [Fig. 1(b)]. The microscopic calculations are in good general agreement with the experiment, and explain the strong distortion of the APT at large  $z$ . The agreement is not so good when the laser is focused right in the jet. This can be explained by considering the harmonic spectrum obtained in  $z = 0$  [Fig. 1(c)], that presents a clear blue shift indicating an important ionization of the generating medium [19]. Indeed, the laser intensity approaches the saturation intensity of neon; the phase-locking is then spoiled by propagation effects and no longer matches the single-atom prediction [6]. Note that the results obtained by Gaarde *et al.* also deviate from the corresponding  $\tilde{\gamma}_t^{\text{sgl}}$  curve when the intensity reaches  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ( $z = -0.4b$ ). In conclusion, the high sensitivity of phase-locking to the focusing geometry can be considerably reduced by spatially selecting the short quantum path contributions, resulting in a regular APT.

Even in optimized focusing conditions, the intrinsic lack of phase-locking in the plateau sets a limitation to the generation of short pulses. Hence, we now turn to the study of the harmonic phase-locking in the cutoff region.

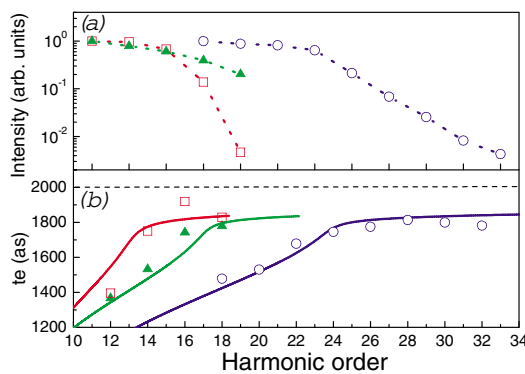


FIG. 2 (color online). Harmonic intensities (a) and emission times (b) obtained by generating in Xe (detection in Ar) at  $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (red squares) and  $6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (green triangles), and by generating in Ar (detection in He) at  $9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (blue circles). In (b), the solid lines are the short trajectory emission times given by the single-atom calculations, and the dashed line indicates the zero of the laser field.

Measurements are difficult here, due to the rapid decrease in harmonic flux. Figure 2 presents the results obtained by generating in xenon and argon at different laser intensities. We plot the emission time of harmonics (group delay), defined as  $t_e(\omega_{q+1}) = \frac{\partial \phi}{\partial \omega}(\omega_{q+1}) \approx \frac{\phi_{q+2} - \phi_q}{2\omega_0}$ , where  $\phi_q$  is the average spectral phase of harmonic  $q$  and  $\omega_0$  the laser frequency. This representation allows both a clear visualization of the harmonic synchronization and a direct comparison with theory. Within the Feynman's path integral analysis of the harmonic emission [17], we calculated the complex recombination times of the electron with the parent ion. Their real part gives the harmonic emission times. Note that calculations in the complex plane are necessary to describe the cutoff, since this is a classically forbidden region. We obtain a good agreement between calculations and measurements [Fig. 2(b)]. In all cases, we observe the same behavior: in the plateau,  $t_e$  increases linearly with the order, leading to a positive linear chirp of the attosecond pulses, larger at low intensity. In the cutoff region, characterized by a sudden decrease of the harmonic intensity [see Fig. 2(a)], the emission time becomes independent of the harmonic order: the harmonics are perfectly phase-locked. Our measurement allows retrieving the absolute timing of harmonic emission with respect to the fundamental field [20]. Cutoff harmonics are found to be emitted  $200 \pm 50$  as before the zero of the IR field.

These results can be discussed within the perspective of the generation of a single attosecond pulse by a few-cycle IR beam, through spectral selection of the cutoff radiation. In that case, our analysis is still valid (neglecting nonadiabatic effects), the difference being that the spectrum becomes continuous, as the process is no more periodic. The resulting attosecond pulse hence fulfills the properties illustrated above: it is Fourier-limited, and it is emitted before the zero of the IR field. The first point is essential for generating ultrashort pulses, and is consistent with the recent measurement of a close-to-Fourier-limit 250 as pulse [4]. Furthermore, the accurate knowledge of the synchronization of the XUV burst with the laser field provides an absolute time reference for their use in attosecond pump-probe spectroscopy.

The cutoff harmonics are interesting for the generation of very short pulses, but provide low XUV flux. In contrast, the low-frequency region of the spectrum could lead to the generation of intense APT, and thus needs to be characterized in terms of harmonic phase-locking. We performed measurements by generating in neon (ionization potential  $Ip_{Ne} = 21.6 \text{ eV} = 13.9 \hbar\omega_0$ ) and detecting in argon ( $Ip_{Ar} = 15.8 \text{ eV} = 10.2 \hbar\omega_0$ ), which allows detection of harmonics above H9. Figure 3 presents the harmonic emission times as a function of the order for several laser intensities. The general behavior is much less regular than in the plateau. The emission times corresponding to sidebands 12 and 14 are systematically

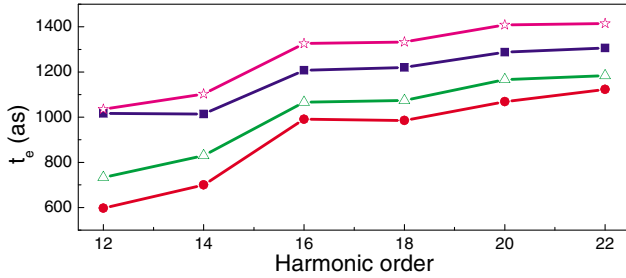


FIG. 3 (color online). Emission time of low-order harmonics generated in Ne (detection in Ar) at  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (red circles),  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (green triangles),  $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (blue squares), and  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (magenta stars).

shifted with respect to the following ones. The shift decreases with increasing laser intensity, from about 300 as at  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  to less than 200 as at  $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . We checked from two independent calculations that this shift was not an artifact due to the atomic phase terms in the sidebands oscillation [6]. The semi-classical calculations successfully used up to now predict that the lowest harmonics are more desynchronized than the plateau ones, with a smooth transition. However, this model is not expected to predict accurately the behavior of low-order harmonics. In particular, sidebands 12 and 14 involve harmonics whose energy is smaller than  $I p_{Ne}$  and are thus classically forbidden in the “three-step” model. The observed shift could be the signature that the main generation mechanism is here a multiphoton process, where resonance effects become important. Such a time shift in the emission implies a temporal broadening of the attosecond pulses. Note that in the case of harmonic generation in xenon ( $I p_{Xe} = 12.1 \text{ eV} = 7.8 \hbar \omega_0$ ), a similar time shift may exist between emissions of harmonic seven and the following ones. This could explain the pulse duration longer than expected recently measured for the superposition of harmonics 7 to 15 generated in this gas [21].

In conclusion, the optimized conditions for the production of short attosecond pulses are generation at high enough laser intensity but below the saturation intensity and spectral selection of the end of the plateau and the cutoff region. Moreover, spatial selection of the short quantum path provides robust experimental conditions with respect to the laser focus/gas jet relative position. Such optimization should result in the generation of sub-100 as pulses with existing experimental setups.

We thank O. Gobert, P. Meynadier, and M. Perdrix for their support on the experiment, and M. B. Gaarde, S. Kazamias, and A. Maquet for fruitful discussions. This work was partially supported by the European

Community’s Human Potential Programme under Contracts No. HPRN-CT-2000-00133, ATTO, and No. HPRI-CT-2002-00191, SLIC. L. C. D. and H. G. M. are also funded by FOM/NWO and L. J. F. is partially supported by EPSRC GR/S22424/01.

- [1] P. Salières, A. L’Huillier, Ph. Antoine, and M. Lewenstein, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **41**, 83 (1999).
- [2] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Phys. B* **21**, L31 (1988).
- [3] M. Hentschel *et al.*, *Nature (London)* **414**, 509 (2001).
- [4] R. Kienberger *et al.*, *Nature (London)* **427**, 817 (2004).
- [5] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001).
- [6] Y. Mairesse *et al.*, *Science* **302**, 1540 (2003).
- [7] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [8] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- [9] Ph. Antoine, A. L’Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1234 (1996).
- [10] M. B. Gaarde and K. J. Schafer, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 213901 (2002).
- [11] V. Vénier, R. Taïeb, and A. Maquet, *Phys. Rev. A* **54**, 721 (1996).
- [12] In [10],  $\gamma_i^{FT}$  is set to 0.775, which corresponds to equal harmonic amplitudes, while in our calculations we take the measured amplitudes into account. With the same convention as Gaarde *et al.*, the experimental curve is slightly shifted vertically, with a maximum  $\tilde{\gamma}_i^{\text{exp}} = 0.6$  at the saturation, which is in excellent agreement with their results.
- [13] P. Salières, A. L’Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- [14] M. Bellini, C. Lynga, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 297 (1998).
- [15] C. Lynga, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999).
- [16] M. B. Gaarde, F. Salin, E. Constant, Ph. Balcou, K. J. Schafer, K. C. Kulander, and A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **59**, 1367 (1999).
- [17] P. Salières *et al.*, *Science* **292**, 902 (2001).
- [18] H. Merdji, M. Kovačev, P. Salières, and B. Carré (to be published).
- [19] C. G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salières, Ph. Balcou, and A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **48**, 4709 (1993).
- [20] L. C. Dinu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 063901 (2003).
- [21] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, and G. D. Tsakiris, *Nature (London)* **426**, 267 (2003).

## Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses

Rodrigo López-Martens,<sup>1,\*</sup> Katalin Varjú,<sup>1,†</sup> Per Johnsson,<sup>1</sup> Johan Mauritsson,<sup>1,‡</sup> Yann Mairesse,<sup>2</sup> Pascal Salières,<sup>2</sup> Mette B. Gaarde,<sup>3</sup> Kenneth J. Schafer,<sup>3</sup> Anders Persson,<sup>1</sup> Sune Svanberg,<sup>1</sup> Claes-Göran Wahlström,<sup>1</sup> and Anne L'Huillier<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Department of Physics, Lund Institute of Technology, P. O. Box 118, SE-221 00 Lund, Sweden*

<sup>2</sup>*Commissariat à l'Energie Atomique, DRECAM/SPAM, Centre d'Etudes de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

<sup>3</sup>*Department of Physics and Astronomy, Louisiana State University, Baton Rouge, Louisiana 70803-4001, USA*

(Received 9 July 2004; published 26 January 2005)

We report the generation, compression, and delivery on target of ultrashort extreme-ultraviolet light pulses using external amplitude and phase control. Broadband harmonic radiation is first generated by focusing an infrared laser with a carefully chosen intensity into a gas cell containing argon atoms. The emitted light then goes through a hard aperture and a thin aluminum filter that selects a 30-eV bandwidth around a 30-eV photon energy and synchronizes all of the components, thereby enabling the formation of a train of almost Fourier-transform-limited single-cycle 170 attosecond pulses. Our experiment demonstrates a practical method for synthesizing and controlling attosecond waveforms.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.033001

PACS numbers: 42.65.Ky, 32.80.Rm

More than ten years ago, it was realized that the broadband harmonic emission that occurs when an atom is ionized in an intense infrared laser field [1] can be a potential source of attosecond pulses [2–4]. The characteristic plateau region of the harmonic spectrum [see Fig. 1(a)] spans from the ultraviolet into the soft x-ray region, thus in principle providing enough bandwidth to produce pulses as short as a few tens of attoseconds. However, the duration of the harmonic emission is not as short as its spectral bandwidth would allow [5]. Therefore, controlling the amplitude and phase of the collected harmonic radiation is the biggest obstacle to successfully produce extremely short attosecond pulses. Recently, several pioneering experiments have demonstrated that the selection of individual portions of the broad harmonic spectrum can lead to the emission of attosecond pulses [6–11]. Isolated pulses were produced by Hentschel and collaborators via spectral selection of the few harmonics in the cutoff region that are in phase [7–9,12]. In this work, we generate, compress, and deliver on target 170 attosecond pulses through careful amplitude and phase control of ten consecutive plateau harmonics generated in a laser-driven ionization process and spanning a total bandwidth of 30 eV. These pulses consist of only 1.2 periods of the central radiation frequency (30-eV photon energy).

The temporal structure of the high-order harmonics originates from the nontrivial electron dynamics responsible for their emission. When an intense laser field interacts with an atom, the electric field can be sufficiently strong for an electron to be released into the continuum via tunnel ionization. This happens for a range of times within the field cycle and the exact time of release determines the initial condition [13,14] for the electron's trajectory in the continuum. After acceleration in the laser field, the electron can return to the ion core and recombine, leading to the emission of a broadband extreme-ultraviolet (XUV) photon. Both the energy and phase of the emitted

light are correlated to the return energy and return time of the electron. The periodicity of this process, twice per cycle, leads in the spectral domain to a series of peaks—the odd harmonics—separated by twice the laser frequency. The first obstacle to generating short attosecond pulses is that each harmonic can be produced in at least two

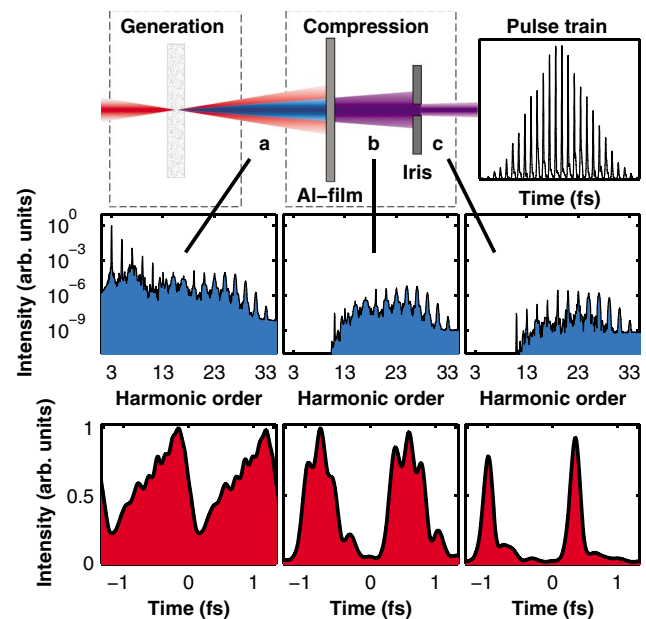


FIG. 1 (color). Principle of the experiment. The generated XUV radiation is compressed in two steps: amplitude and phase control using a 600 nm-thick aluminum film; spatial filtering with a 1.6 mm iris located 35 cm after the harmonic generation cell. The spectral and temporal evolution of the XUV radiation, simulated by integrating the time-dependent Schrödinger equation and by solving the Maxwell wave equation for the generated fields, illustrates these effects for the three indicated regions (a)–(c). The generated attosecond pulse train is indicated at the top.



ways, corresponding to two different electron trajectories with the same return energy [15–17]. These two classes of trajectories lead to completely different phase behaviors for the generated fields, thereby preventing the formation of bandwidth-limited XUV pulses. Furthermore, even considering just a single class of trajectories, the emitted XUV radiation is intrinsically frequency chirped. A recent experimental study [5] of plateau harmonics generated in argon and neon shows that, for the shortest trajectories, the attosecond pulses produced indeed exhibit a positive chirp. Without external phase compensation, the useful bandwidth over which the shortest pulses can be obtained is reduced to only a few harmonics.

In the optical domain, many techniques have been developed to reshape the amplitude and rephase the constituent frequencies of ultrashort light pulses in order to keep them localized in time inside the target chamber [18]. The extension of these techniques to the XUV region is a formidable challenge. Freestanding metallic filters [7–10] and multilayer mirrors [7–9] have been used to achieve some spectral filtering in the XUV. The use of plasma media [5] and metallic films [5,19] has been suggested as a way to compensate for the chirp of the XUV radiation. In the present experiments, a 1-mJ-40-fs-800-nm Ti:sapphire laser beam is focused into a windowless gas cell filled with argon to a static pressure of 15 mbar (Fig. 1). The intensity is estimated to be  $1.4 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . The negative group delay dispersion (GDD) of a thin aluminum foil is used to compensate for the intrinsic chirp across a bandwidth encompassing ten harmonics generated in argon. The onset of transmission of aluminum at lower frequencies and the spectral cutoff of high-harmonic emission at higher frequencies act together as a bandpass filter, which selects a spectrum centered at 30 eV with a total bandwidth of 30 eV. To solve the problem of the multiple trajectories contributing to each harmonic, we take advantage of the fact that they have very different coherence properties. The long trajectories lead to spectrally broad and spatially divergent radiation [20,21] and can therefore be removed by adding a small aperture after the harmonic generation cell. Over a spectral range corresponding to the 17th to the 27th harmonic frequencies (25 to 40 eV), aluminum has an almost constant negative GDD, which means that lower frequencies travel more slowly through the foil than the higher frequencies [5,19]. By choosing the appropriate foil thickness, the transmitted harmonics in this spectral range become synchronized. Closer to the absorption edge of aluminum, at 15 eV, the GDD varies rapidly and thus is not suitable for chirp compensation below the 17th harmonic. However, in this range, the filter is strongly absorbent and suppresses all of these lower harmonics. In addition to removing the fundamental laser pulse, the Al filter thus exerts both amplitude and phase control.

To achieve single-cycle attosecond pulses, we have to synchronize more than the six harmonics controlled by the filter. We therefore choose the atomic gas and the generat-

ing infrared laser intensity so as to make the high-harmonic spectral cutoff, where the harmonics are naturally well synchronized [9], coincide with the region above 40 eV where the GDD of aluminum is zero. Thus, the internal (atomic) conditions for harmonic generation are tuned to exactly match the effects of the external elements (filter and aperture) located after the generation point, leading to almost total control over the whole span of the broadband XUV spectrum (approximately 30 eV or 7 PHz). This allows us to shape the harmonic spectrum and synchronize its constituent frequencies to produce a pulse train containing almost transform-limited 170 attosecond bursts, corresponding to only little more than one oscillation of the central carrier frequency around 7 PHz.

Numerical simulations of the spectral and temporal structure of the emitted light in our experimental conditions are shown immediately below the schematic experimental setup in Fig. 1. The generated spectrum [Fig. 1(a)] exhibits characteristic high-harmonic behavior, starting with a rapid decrease followed by a plateau region and an abrupt cutoff. The temporal structure of the generated harmonic emission around the top of the laser pulse is dominated by the beating of the two strongest harmonics in the spectrum, the third and the fifth. The pulses transmitted through the Al filter are still long due to the contributions from the different quantum paths [Fig. 1(b)]. After the spatial filtering, there is only one short single-cycle attosecond burst per half cycle of the driving laser frequency [Fig. 1(c)]. Correspondingly, the individual harmonic peaks are sharper, with strongly suppressed side structures.

To characterize our attosecond pulses, we use the technique called RABITT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) [6,22], based on two-photon two-color ionization by one XUV photon and one infrared laser photon as illustrated in Fig. 2. The modulation of the “sideband” signal, originating from the interference between two processes—absorption of an XUV photon and an IR photon ( $q\omega_{\text{IR}} + \omega_{\text{IR}}$ ), and absorption of an XUV photon and emission of an IR photon ( $(q+2)\omega_{\text{IR}} - \omega_{\text{IR}}$ )—is measured as a function of the temporal delay,  $\tau$ , between the XUV and IR. The signal is proportional to  $\cos(\phi_{q+2} - \phi_q + 2\omega_{\text{IR}}\tau)$ , allowing us to determine the phase difference  $\phi_{q+2} - \phi_q$  and thus the delay  $(\phi_{q+2} - \phi_q)/2\omega_{\text{IR}}$ . In our experiment, we recombine both XUV and IR pulses after the generation region, in a Mach-Zehnder arrangement, which allows us to control the phase and amplitude of the broadband XUV radiation independently of the probe. We obtain the variation of the harmonic delay by measuring the spectral phase differences between the harmonics. Combining this knowledge with the easily obtainable harmonic amplitudes enables us to accurately reconstruct the average attosecond pulse in the train. In contrast with previous RABITT measurements [5,6,11], where no active amplitude shaping was per-

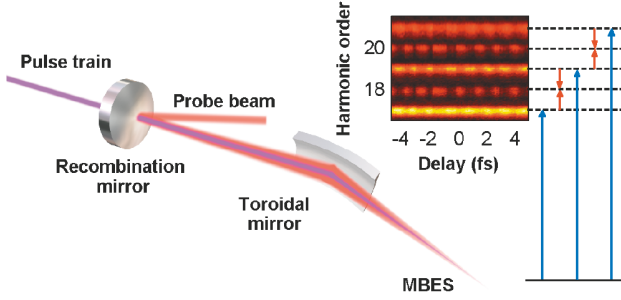


FIG. 2 (color). Attosecond pulse characterization. The measurement, known as RABITT, is based on the two-color two-photon ionization process pictured on the right. A typical acquisition with harmonic and sideband signals (in false colors) is shown as a function of the delay. The IR pulse is overlapped with the XUV pulse by means of a convex spherical mirror with a hole in the center. The curvature and position of this mirror is chosen so that its virtual focal point coincides with the point of harmonic generation, allowing us to match the divergence of the XUV and IR beams. Both beams are refocused by a toroidal platinum mirror into the sensitive region of a magnetic bottle electron time-of-flight spectrometer filled with argon or neon up to a static pressure of  $\sim 10^{-4}$  mbar.

formed and the spectral bandwidth was artificially selected by the analysis, we here characterize all the light that reaches the detection chamber. This requires the use of two different target gases with different ionization potentials: argon, which has a lower ionization potential, is used for the lower harmonics and neon, which has a flat ionization cross section over a larger energy range, is used to characterize the highest harmonics.

The amplitude and phase control exerted over the XUV radiation, resulting in compression of the individual attosecond pulses, is demonstrated in Fig. 3. We performed measurements using up to three aluminum films, each 200 nm thick. The effect of the amplitude shaping [Fig. 3(a)] is mainly to suppress the lower harmonics, as seen by comparing their relative strengths in the two spectra. The relative delay of the harmonics is presented in Fig. 3(b). Between the 17th and 27th harmonic frequencies, the variation of the delay is clearly smaller when using three films, since the aluminum GDD compensates for the delays between the consecutive harmonics. Harmonics higher than the 27th are already well synchronized since the generation intensity was chosen such that these harmonics belong to the cutoff region in argon and their relative phases are hardly affected by the filter. The reconstructed average attosecond pulse shape in the different cases is shown in Fig. 3(c). When no filters are present, we calculate a pulse duration of 480 as assuming the same spectral bandwidth as in the one-filter case. In the three-filter case, we obtain a full width at half maximum of 170 as, the shortest pulse reported to date. At this photon energy (30 eV), this duration corresponds to only 1.2 light cycles.

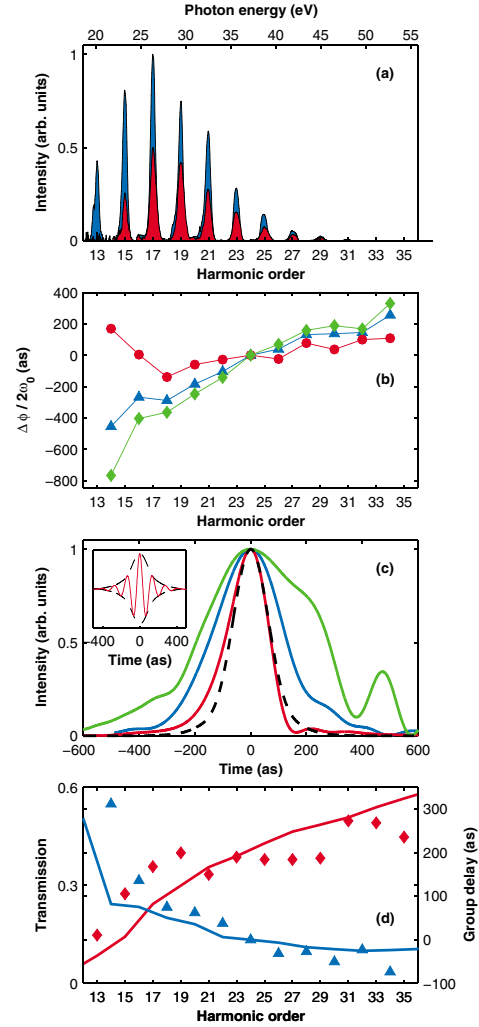


FIG. 3 (color). Compression of XUV radiation via amplitude and phase control. The effect of the aluminum films on the intensities and the synchronization of the harmonics is presented in (a) and (b) for one (blue) and three (red) 200 nm-thick films. These results contain sufficient information to reconstruct the average attosecond pulse in the train (c). The green line shows an extrapolation to zero films assuming the same bandwidth as in the one-filter case. The aluminum improves the synchronization of the harmonics resulting in a compression of the pulse duration from 480 as (zero filter, green curve) down to 280 as (one filter, blue curve) and 170 as (three filters, red curve). The latter is very close to the transform limit of 150 as shown by the dashed line and corresponds to only 1.2 cycles of the carrier frequency (7 PHz). The inset shows the XUV electric field assuming a cosine carrier. The measured transmission (red symbols) and group delay (blue symbols) of our filter are compared to tabulated values (solid lines) in (d).

The transmission and group delay of our aluminum filters, which include a thin layer of oxide with a total thickness estimated at 15 nm, can be extracted from these measurements and compared to tabulated data [23,24]. The tabulated transmission data [Fig. 3(d), red line] compare

very well with those measured for the average filter used in the experiment. The phase difference measured by the RABITT technique [blue symbols in Fig. 3(d)] is reasonably close to the group delay caused by the aluminum foil (with the oxide layer). There is, however, a deviation at low energies (below 25 eV), which may be due to uncertainty in the refractive indices in this spectral region. Using our experimental results, we can also calculate the intrinsic second-order spectral phase in the plateau region. We obtain  $2.1 \times 10^{-32} \text{ s}^2$ , in agreement with previous measurements [5]. The corresponding chirp rate is  $3.7 \times 10^{31} \text{ s}^{-2}$ .

In conclusion, we can routinely generate a well-characterized train of ultrashort attosecond pulses using a commercial 2-mJ-40-fs-1-kHz Titanium Sapphire laser system, thereby showing that the attosecond time scale can be easily accessed in many laboratories. In contrast to the 130 as-pulse width mentioned in [5], the 170 as measured in the present work does not require further spectral selection: we really produce a train of attosecond pulses. We achieve significantly shorter pulse duration than in [10], thanks to the external phase and amplitude control. We create attosecond pulses in a different energy region than [7–9] and in a technologically simpler way, albeit in a train rather than as an isolated pulse. These results prove that attosecond optical manipulation experiments are indeed possible with currently available technology. This opens the door to the generation of well-characterized attosecond pulses in the soft x-ray region below the sub-100 as mark, which are essential for monitoring fast electronic processes in atoms and molecules.

Our technique, combining spatial filtering with amplitude and phase control of the XUV radiation, can be extrapolated to photon energies reaching the soft x-ray region [25], provided lighter rare gases (e.g., neon or helium) or ions [26] are used for the generation of the high harmonics and other materials with negative dispersion are used for the spectral filtering and compression [5,19]. The dispersion of atoms is always negative after absorption edges, and the chirp of the pulses in the train is always positive when the short trajectory is selected, making phase control in principle possible over a wide range of XUV energies. Trains of such extremely short pulses will make it possible to study and control a large number of atomic and molecular strong-field processes with unprecedented time resolution [27]. Finally, the manipulations of the XUV amplitudes and phases that we performed in order to reach the single cycle are the first step towards the production of arbitrary attosecond waveforms, which will facilitate broadband coherent control in the XUV range.

We acknowledge the support of the European Community's Improving Human Potential Programme (ATTO), the Knut and Alice Wallenberg Foundation, and the Swedish Science Council. K.S. and M.B.G. acknowledge the support from the National Science Foundation. We acknowledge the help of Ivan Maximov and Zsolt Geretovszky in carrying out scanning electron microscopy studies of the aluminum films at the Solid State Physics Division of Lund University and of Harm Gert Muller and Rob Kemper from the FOM Institute in Amsterdam with the electron spectrometer.

---

\*Current address: Laboratoire d'Optique Appliquée, Palaiseau, France.

†On leave from: the Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, Szeged, Hungary.

‡Current address: Department of Physics and Astronomy, Louisiana State University, Baton Rouge, USA.

- [1] M. Ferray *et al.*, J. Phys. B **21**, L31 (1988).
- [2] G. Farkas and C. Tóth, Phys. Lett. A **168**, 447 (1992).
- [3] S.E. Harris *et al.*, Opt. Commun. **100**, 487 (1993).
- [4] P.B. Corkum *et al.*, Opt. Lett. **19**, 1870 (1994).
- [5] Y. Mairesse *et al.*, Science **302**, 1540 (2003).
- [6] P.M. Paul *et al.*, Science **292**, 1689 (2001).
- [7] M. Hentschel *et al.*, Nature (London) **414**, 509 (2001).
- [8] R. Kienberger *et al.*, Science **297**, 1144 (2002).
- [9] R. Kienberger, *et al.*, Nature (London) **427**, 817 (2004).
- [10] P. Tzallas *et al.*, Nature (London) **426**, 267 (2003).
- [11] S.A. Aseyev *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 223902 (2003).
- [12] I.P. Christov, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. **78**, 1251 (1997).
- [13] K.J. Schafer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993).
- [14] P.B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- [15] M. Lewenstein *et al.*, Phys. Rev. A **52**, 4747 (1995).
- [16] P. Antoine *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996).
- [17] M.B. Gaarde and K.J. Schafer, Phys. Rev. Lett. **89**, 213901 (2002).
- [18] A.M. Weiner, Rev. Sci. Instrum. **71**, 1929 (2000).
- [19] K.T. Kim *et al.*, Phys. Rev. A **69**, 051805(R) (2004).
- [20] M. Bellini *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998).
- [21] P. Salières *et al.*, Science **292**, 902 (2001).
- [22] H.G. Muller, Appl. Phys. B **74**, S17 (2002).
- [23] D.Y. Smith *et al.*, in *Handbook of Optical Constants of Solids*, edited by E. D. Palik (Academic Press, Orlando, 1985), pp. 369–398.
- [24] F. Gervais, in *Handbook of Optical Constants of Solids II*, edited by E.D. Palik (Academic Press, San Diego, 1991), pp. 761–775.
- [25] E. Seres *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 163002 (2004).
- [26] E.A. Gibson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 033001 (2004).
- [27] K.J. Schafer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 023003 (2004).

# Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts

Y. Mairesse and F. Quéré

DSM-DRECAM—Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

(Received 14 April 2004; published 27 January 2005)

We describe a method for the complete temporal characterization of attosecond extreme ultraviolet (xuv) fields. An electron wave packet is generated in the continuum by photoionizing atoms with the attosecond field, and a low-frequency dressing laser pulse is used as a phase gate for frequency-resolved-optical-gating-like measurements on this wave packet. This method is valid for xuv fields of an arbitrary temporal structure, e.g., trains of nonidentical attosecond pulses. It establishes a direct connection between the main attosecond characterization techniques demonstrated experimentally so far, and considerably extends their scope, thus providing a general perspective on attosecond metrology.

DOI: 10.1103/PhysRevA.71.011401

PACS number(s): 32.80.Wr, 42.65.Ky, 42.65.Re, 41.50.+h

The generation of isolated attosecond (as) pulses [1,2] and trains of attosecond bursts [3–5] has recently been demonstrated experimentally, opening the route to the time-domain study of electronic dynamics in matter [6]. Characterizing such attosecond fields is challenging, not only due to the extremely short time scales involved and the large associated bandwidth, but also because these fields are in the extreme ultraviolet (xuv) range, where no efficient nonlinear medium is available. It is thus extremely difficult to directly apply the conventional methods of ultrafast optics. Several schemes have now been demonstrated [1–3,5] or proposed [7–11] to circumvent these problems. Most of these methods consist of converting the as pulses into continuum electron wave packets, through the photoionization of atoms, and in using the femtosecond oscillations of an infrared laser field to gain information on the temporal structure of these wave packets. However, only a few of these methods enable a complete characterization, and most of them are restricted to specific and simple temporal structures, e.g., single isolated as pulses [1,2,7–10] or trains of identical as bursts [3,4]. Moreover, no clear connection has been established yet between the main demonstrated techniques [1–3].

We describe a simple and general method allowing for the complete characterization of arbitrary as fields: frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts (FROG CRAB [12], hereafter called CRAB). Introducing this technique allows us to transpose some of the most efficient tools of the very mature field of ultrafast optics to attosecond metrology. It also merges the main techniques demonstrated so far [1–4] into a common and more general framework, thus providing a general perspective of attosecond measurements.

CRAB is inspired from frequency-resolved optical gating (FROG), a widely used technique for the full temporal characterization of visible pulses [13]. FROG consists of decomposing the pulse to be characterized in temporal slices thanks to a temporal gate  $G(t)$ , and then measuring the spectrum of each slice. This provides a two-dimensional set of data, called a spectrogram or FROG trace, given by

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2, \quad (1)$$

where  $E(t)$  is the field of the pulse to be characterized, and  $\tau$  is the variable delay between the gate and the pulse. The gate may either be a known function of the pulse, as in most implementations of FROG, or an unrelated—and possibly unknown—function (blind FROG) [14]. Various iterative algorithms, such as the very efficient principal component generalized projections algorithm (PCGPA) [14], can then be used to extract both  $E(t)$  and  $G(t)$  from  $S(\omega, \tau)$ . The FROG technique is best understood intuitively by considering measurements performed with pure *amplitude* gates  $G(t) = f(t) \in \mathcal{R}$ . However, femtosecond pulses metrology shows that pure *phase* gates  $G(t) = e^{i\phi(t)}$  can also be used [15].

As most other attosecond measurement techniques, CRAB is based on the photoionization of atoms by the as field, in the presence of a dressing laser field. We consider an atom with ionization potential  $I_p$ , photoionized by an xuv electric field  $\mathbf{E}_X(t)$ , in the presence of a low-frequency laser field  $\mathbf{E}_L(t) = -\partial \mathbf{A} / \partial t$  shifted by a variable delay  $\tau$  [ $\mathbf{A}(t)$  being the vector potential of this laser field]. The transition amplitude to the final continuum state  $|\mathbf{v}\rangle$  with momentum  $\mathbf{v}$ , is given, within the strong field approximation, by [8,9,16]

$$a(\mathbf{v}, \tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W + I_p)t}, \quad (2)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' [\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2]. \quad (3)$$

$\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$  is the instantaneous momentum of the free electron in the laser field.  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$  is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum state  $|\mathbf{p}\rangle$ .  $W = \mathbf{v}^2/2$  is the final kinetic energy of the electron.

Equations (2) and (3) show that the main effect of the laser field is to induce a temporal phase modulation  $\phi(t)$  on the electron wave packet  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}} \mathbf{E}_X(t)$  generated in the continuum by the xuv field. Qualitatively, the trajectory of a photoelec-



tron from its parent ion to the spectrometer depends on its time of ionization within the laser field optical cycle [8]: the phase it accumulates along this trajectory is thus temporally modulated by the dressing field. Because of the scalar product  $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}$  in Eq. (3), the photoelectrons have to be observed in a given direction for the phase modulation to be well defined.

Different ways of using this ultrafast electron-phase modulator for the characterization of xuv fields have already been demonstrated or proposed. In the limit of a single many-laser-cycle-long xuv pulse,  $\phi(t)$  corresponds to a periodic phase modulation on the photoelectron wave packet. This leads to the appearance of sidebands in the photoelectron energy spectrum [17], which have been used to characterize fs to ps xuv pulses, either by cross correlation with the envelope of fs laser pulses [17], or by FROG measurements [18,19]. In the other limit of an as xuv pulse significantly shorter than the dressing field optical period, depending on the choice of the delay  $\tau$ , attosecond spectral shearing interferometry [10] or streak-camera [2,8,9] measurements can be performed. In the latter,  $\tau$  is chosen in such a way that the phase modulation is quadratic in time: the electron wave packet then experiences a linear streaking in energy  $dW/dt = -\partial^2 \phi / \partial t^2$ , and the resulting distortion of the photoelectron spectrum provides direct information on the duration of the as pulses.

CRAB provides another, much more versatile, way of using this electron-phase modulator. Its principle can be derived from the FROG technique, by comparing the expression of  $S(\omega, \tau)$  given by Eq. (1), which describes an optical FROG, and the expression of the photoelectron spectrum  $|a(\mathbf{v}, \tau)|^2$  in a given observation direction, obtained from Eqs. (2) and (3). This comparison shows that, by scanning the delay  $\tau$ , the dressing laser field can be used as a temporal phase gate  $G(t) = e^{i\phi(t)}$  for FROG measurements on electron wave packets generated in the continuum by attosecond fields. The full characterization of these wave packets provides all the information on the temporal structure of the generating as fields.

To demonstrate that this electron phase modulator is well suited for attosecond measurements, we consider the particular case of a linearly polarized dressing laser field  $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t)\cos(\omega_L t)$ , long enough for the slowly varying envelope approximation to apply.  $\phi(t)$  is then given by  $\phi(t) = \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t)$ , with

$$\begin{aligned}\phi_1(t) &= - \int_t^{+\infty} dt U_p(t), \\ \phi_2(t) &= (\sqrt{8WU_p}/\omega_L)\cos\theta\cos\omega_L t, \\ \phi_3(t) &= -(U_p/2\omega_L)\sin(2\omega_L t).\end{aligned}\quad (4)$$

$U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_L^2$  is the ponderomotive potential of the electron in the laser field at time  $t$ . The observation angle  $\theta$  is the angle between  $\mathbf{v}$  and the laser polarization direction.  $\phi_2(t)$  and  $\phi_3(t)$  oscillate, respectively, at the laser field frequency and its second harmonic. Due to the fast oscillations in  $\phi(t)$  and to the large amplitude of the phase modulation, this electron-phase modulator has a bandwidth  $|\partial\phi/\partial t|_{\max}$  of

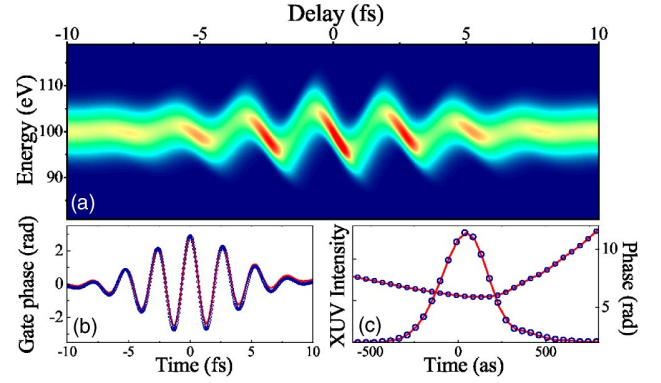


FIG. 1. (a) CRAB trace of a single 315 as pulse [full width at half maximum (FWHM) of intensity], having second- and third-order spectral phases (Fourier limit=250 as), gated by a Fourier-limited 6-fs 800 nm laser pulse, of 0.5 TW/cm<sup>2</sup> peak intensity. The electrons are collected around  $\theta=0$  with an acceptance angle of  $\pm 30^\circ$ . (b), (c) A comparison of the exact as pulse and the laser-induced gate phase  $\phi(t)$  (full line) with the corresponding reconstructions (dots) obtained from the CRAB trace after 100 iterations of the PCGPA algorithm [20]. The gate modulus  $|G(t)|$  is constant and equals to 1.

5 fs<sup>-1</sup> ( $\approx 20$  eV) for realistic parameters ( $W=100$  eV,  $\theta=0$ ,  $I_{\text{laser}}=10$  TW/cm<sup>2</sup> at 800 nm), which makes it adequate for attosecond measurements. On the other hand, as we will show, the slow variations of all terms of  $\phi(t)$  associated to the envelope  $E_0(t)$  of the laser pulse, allow us to simultaneously determine the femtosecond temporal structure of trains of as pulses.

We now use Eqs. (2) and (3), and the iterative PCGPA algorithm developed for the optical blind FROG, to simulate an experiment and demonstrate different schemes of CRAB for a linearly polarized laser pulse. We first show how CRAB extends existing methods for single as pulses [1,2] and trains of as bursts [3], and finally we present the case of an as field that, as far as we know, no other existing method allows to characterize.

Figure 1(a) shows a CRAB trace calculated around the  $\theta=0$  direction using Eqs. (2) and (3), for a single 315 as pulse. From a classical point of view, this trace can be understood qualitatively as resulting from the oscillations of a suddenly freed electron in the dressing laser field. Figures 1(b) and 1(c) show the as pulse, and the gate phase  $\phi(t)$ , retrieved from this trace using PCGPA [20], and compares them with the exact profiles. For both signals, the agreement is excellent.

We emphasize the striking similarity of the CRAB trace of Fig. 1, with Figs. 4 of [1] and [2], which provided experimental evidences of the generation of a single as pulse. Our approach provides a systematic and straightforward procedure for the full retrieval of the laser pulse and the as burst from such measurements. This procedure has many advantages which are inherited from optical FROG [13]. Due to the high redundancy of information in the CRAB trace, it is very robust against noise, and is unlikely to properly converge if experimental flaws exist, e.g., shot-to-shot variations in the as pulse temporal structure. The retrieval of the laser

pulse offers an additional opportunity to check the validity of the measurement, by comparison with the results of the standard methods for visible pulses.

For any given delay  $\tau_0$  in Fig. 1(a), the spectrum  $S(\omega, \tau_0)$  can be considered as an attosecond streak-camera measurement [8], each delay corresponding to a different streaking speed: in this scheme of CRAB, the information on the temporal structure of the pulse is also obtained by streaking the electron energy. The ultimate temporal resolution is thus determined by the maximum streaking speed that can be achieved, i.e., by the maximum laser intensity that can be applied to the atoms. This leads to a limit of  $\approx 70$  as for  $W = 100$  eV for near Fourier-limited pulses, as demonstrated in [8].

As illustrated by the results of Fig. 1, CRAB has a large angular acceptance at  $\theta=0$ : approximating  $\phi(t)$  by the long-pulse expression Eq. (4), and given that  $U_p \ll W$ ,  $\phi_2(t)$  is the dominant term of  $\phi(t)$  for all angles except  $\theta \approx \pi/2$ , and has a slow angular dependence around  $\theta=0$ . However, one specificity of  $\phi_2(t)$  is that it depends on the final electron energy  $W$ . This dependence is not taken into account by the existing reconstruction algorithms, thus introducing systematic errors in the reconstructed pulses. We have checked numerically that these errors are negligible provided the bandwidth of the as pulse is small compared to its central frequency. Besides, such systematic errors do not occur at  $\theta=\pi/2$ , where  $\phi_1(t)$  and  $\phi_3(t)$  dominate, but measurements then have to be carried out with a much smaller collection angle, typically of a few degrees.

We now turn to the complete characterization of trains of as pulses using CRAB. Such trains are naturally generated by high-order harmonic generation (HHG) on gaseous targets with intense many-cycle laser pulses, and their accurate characterization is essential for their future use in attosecond pump-probe experiments. CRAB requires no specific relationship between the periods  $T$  of the train and  $T_\phi$  of the laser-induced phase-gate oscillations. However, in the most general case, the resulting CRAB trace is complicated, which makes it difficult to determine how the temporal information is encoded in the trace. Two particular schemes enable us to get some insight into how CRAB works for trains.

The first one corresponds to  $T=T_\phi$ , i.e., the train and the gate oscillations have the same period. The as field generates a train of continuum electron wave packets, which experience almost identical energy streakings by the laser field. Due to the resulting temporal periodicity of the dressed train, the obtained CRAB trace is similar to the single-pulse trace of Fig. 1(a), but is now discretized along the energy axis, with a sampling step of  $1/T$ . Thus, in this scheme, the temporal information on each as burst is still obtained through an energy streaking, resulting in an intensity-dependent temporal resolution. This streaking now leads to the appearance of “outer” sidebands, below or above the field-free spectrum.

The second instructive scheme corresponds to  $T=T_\phi/2$ , i.e., the period of the train is half that of the gate oscillations. This situation is naturally encountered experimentally when the same laser pulse is used both to generate HHG in a gas and to characterize the resulting superposition of harmonics [3]. Figure 2 shows a CRAB trace obtained in this scheme,

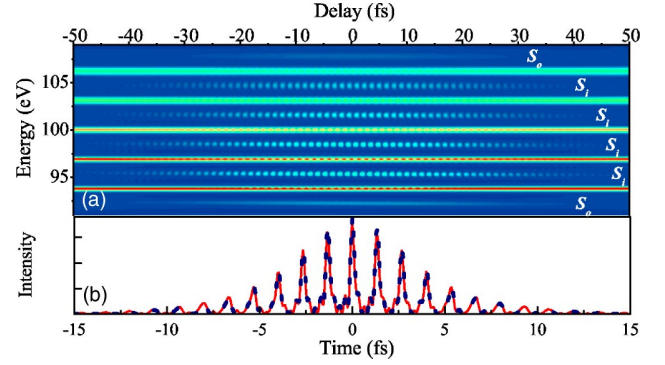


FIG. 2. (a) CRAB trace at  $\theta=0$  of a 12-fs-train of nonidentical as pulses, of period  $T/2=1.3$  fs, gated by a 30-fs-800 nm- ( $T=2.6$  fs) laser pulse, of  $0.05$  TW/cm<sup>2</sup> peak intensity, assuming a spectrometer resolution of 100 meV. The as pulses are shorter in the center of the train ( $\approx 250$  as), than in the edges ( $\approx 400$  as). The outer and inner sidebands are respectively labelled  $S_o$  and  $S_i$ . (b) A comparison of the exact as train (red line) and the reconstruction (dotted blue line) obtained from the CRAB trace after 750 iterations of the PCGPA algorithm.

and the train of nonidentical pulses retrieved from this trace. Although this configuration can also be entirely analyzed in the time domain [21], it is more easily understood in the frequency domain: the information on the temporal structure of the bursts is partly obtained through the same process as in resolution of attosecond beating by interference of two-photon transitions (RABBITT [3,4,11]), which is the following. Due to the very specific ratio of  $T$  and  $T_\phi$ , the upper first-order sideband of the harmonic  $n$  overlaps and interferes with the lower first-order sideband of the harmonic  $n+1$ . As the delay is scanned, these interferences lead to an oscillation of these “inner” sideband amplitudes with a period of  $T$  [Fig. 2(a)]. RABBITT measurements are performed in the perturbative intensity regime: the phase of these oscillations then provides the relative phase between neighboring harmonics, which suffices to retrieve trains of identical as bursts.

The “interferometric” version of CRAB shown in Fig. 2 extends RABBITT in several respects. (i) By scanning the delay until the two fields no longer overlap, and thus exploiting the envelope of the laser pulse in a similar way as in [18,19], trains of nonidentical pulses can now be retrieved. (ii) To obtain the reconstruction of Fig. 2(b), we not only use the amplitude of the inner sidebands [3,4], the full photoelectron spectrum is injected in the PCGPA algorithm. (iii) Using this procedure, there is no more restriction on the intensity of the dressing field. At high intensity, the information on the as pulses temporal structure is encoded both in the sideband interference pattern and a streaking effect [leading to outer sidebands, Fig. 2(a)]. Thanks to the interference effect, the temporal resolution of this scheme does not depend on the laser intensity: by taking advantage of the gaps in between the harmonics, only a small bandwidth is required for the electron phase modulator, whatever the number of harmonics involved. Measurements of trains of arbitrarily short as bursts can thus be carried out without necessarily using very high laser intensities, a major advantage over the streaking scheme previously described. From an experimental point of

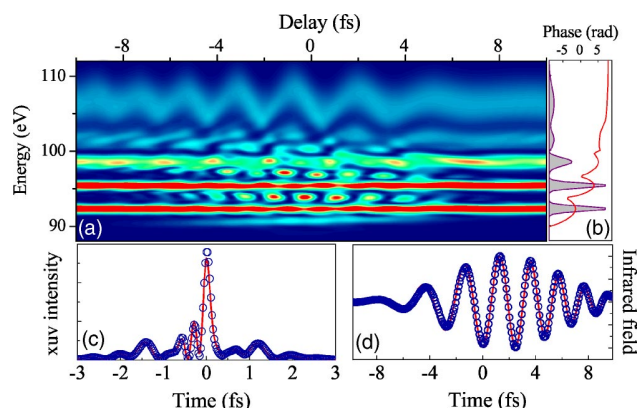


FIG. 3. (a) CRAB trace at  $\theta=0$  of a complex as field, whose spectrum (shaded curve) and spectral phase (red line) are shown in panel (b). The spectrum consists of discrete peaks spaced by  $\approx 3$  eV in its lower part, and a continuous component in its upper part. In (c) and (d), the exact intensity profile of the as field and the laser electric field (full lines) are compared to the ones retrieved from this trace (dots) after 300 iterations of PCGPA.

view, the finite resolution of electron spectrometers can introduce systematic errors in CRAB traces of trains if the harmonics are too narrow. We have determined numerically that for an accurate retrieval, a resolution of 100 meV sets an upper limit of about 8 fs on the Fourier-limited duration of the as train.

We now illustrate the universality of CRAB by treating the case of a rather complicated as field (Fig. 3). The spectrum of this field qualitatively corresponds to what would be

obtained by selecting the end of the plateau and the cutoff of the high-harmonic spectrum generated in a gas by a few-cycle laser pulse [Fig. 3(b)]. As in HHG in gases, each harmonic peak has a different chirp, and the relative phase of these peaks does not vary linearly [Fig. 3(b)]. Figure 3(a) shows the CRAB trace obtained when an 800-nm 7-fs chirped laser pulse ( $\lambda=800$  nm and  $I=0.05$  TW/cm<sup>2</sup>) is used as a phase gate. The temporal intensity profile of the as field retrieved from this CRAB trace is in excellent agreement with the exact profile [Fig. 3(c)]. Based on the previous analysis of simpler CRAB traces, two main relevant features can be identified in Fig. 3(a): the overall oscillations of the continuous upper part, and the oscillating sidebands in the discrete lower part. As the energy varies, a gradual transition between these two regimes is observed. CRAB is the only existing method for the full characterization of such complex as fields. This will, for instance, allow us to study the transition regime between as trains and single as pulses generated by few-cycle laser pulses or through polarization gating [22].

In a conclusion, FROG CRAB is a general method for the complete temporal characterization of arbitrary attosecond fields, which consists of adapting the concepts of optical FROG to electron wave packets. It is simple, systematic, and robust against noise and experimental flaws. All the experimental tools are available for its implementation, thus opening the way to the routine characterization of attosecond fields.

Discussions with P.B. Corkum, C. Dorrer, J. Itatani, M. Yu. Ivanov, Ph. Martin, P. Salières, and I. A. Walmsley are gratefully acknowledged.

- 
- [1] M. Hentschel *et al.*, *Nature (London)* **414**, 509 (2001).
  - [2] R. Kienberger *et al.*, *Nature (London)* **427**, 817 (2004).
  - [3] P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001).
  - [4] Y. Mairesse *et al.*, *Science* **302**, 1540 (2003).
  - [5] P. Tzallas *et al.*, *Nature (London)* **426**, 267 (2003).
  - [6] M. Drescher *et al.*, *Nature (London)* **439**, 803 (2002).
  - [7] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 412 (2001).
  - [8] J. Itatani *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
  - [9] M. Kitzler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173904 (2002).
  - [10] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 073902 (2003).
  - [11] H. G. Muller, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **74**, S17 (2002).
  - [12] <http://www.dpi.qld.gov.au/fishweb/2455.html>
  - [13] *Frequency-Resolved Optical Gating*, edited by R. Trebino (Kluwer Academic, Boston, 2000).
  - [14] D. Kane, *IEEE J. Quantum Electron.* **35**, 421 (1999).
  - [15] M. Thomson, J. Dudley, L. Barry, and J. Harvey, *Opt. Lett.* **23**, 1585 (1998).
  - [16] M. Lewenstein *et al.*, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
  - [17] J. M. Schins *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994).
  - [18] J. Norin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 193901 (2002).
  - [19] T. Sekikawa, T. Kanai, and S. Watanabe, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 103902 (2003).
  - [20] The iterative retrievals can be viewed at <http://www-drecam.cea.fr/spam/themes/atto>
  - [21] F. Quéré, Y. Mairesse, and J. Itatani, *J. Mod. Opt.* (to be published).
  - [22] P. Corkum, N. Burnett, and M. Ivanov, *Opt. Lett.* **19**, 1870 (1994).

---

# Temporal characterization of attosecond xuv fields

F. Quéré<sup>1</sup>, Y. Mairesse<sup>1</sup>, J. Itatani<sup>2</sup>

<sup>1</sup> DSM-DRECAM-Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France [quere@drecam.cea.fr](mailto:quere@drecam.cea.fr),

<sup>2</sup> Steacie Institute for Molecular Sciences, National Research Council of Canada, Ottawa, Ontario, Canada K1A 0R6 [jiro.itatani@nrc.ca](mailto:jiro.itatani@nrc.ca)

**Summary.** Building on the concepts developed for femtosecond metrology, this paper proposes a unified perspective of different techniques for the temporal characterization of attosecond xuv fields. These techniques rely on the conversion of the field to be characterized into a continuum electron wavepacket replica, through single-photon photoionization of an atom. A dressing laser field is then used as an ultrafast phase modulator on this wavepacket, for instance allowing to shear or to streak it in energy. We present different ways of using this time-nonstationary filter with a multi-PHz bandwidth to characterize attosecond electron wavepackets, and hence attosecond fields.

## 1 Introduction

Accessing the attosecond time scale is an important challenge for ultrafast science, since this is the relevant scale for the dynamics of many electronic processes in matter. Two paths are presently being explored for time-resolved measurements with attosecond resolution, using intense femtosecond lasers.

The first one consists in using high-harmonic generation (HHG) in gases to produce attosecond xuv pulses, which can be used to trigger or to probe an ultrafast process. This approach has already been successfully used to follow the Auger decay of an excited ion, occurring on a few femtoseconds time-scale [1], using a scheme with potential attosecond resolution.

In the second path, the correlations between several particles are exploited to resolve attosecond processes without using attosecond light pulses. This concept has been demonstrated by probing the fast nuclear dynamics of a  $D_2^+$  molecule, using attosecond electron pulses correlated with the nuclear wavepacket [2,3]. These correlated wavepackets were obtained by strong-field ionization of the  $D_2$  molecules by a *femtosecond* infrared laser pulse.

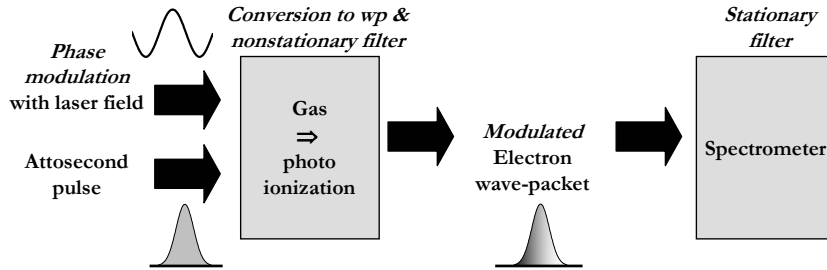
Following the first of these two paths requires methods for accurate temporal characterization of attosecond xuv fields, a problem that has long hindered the development of attosecond science. This obstacle has now been



surmounted : during the past few years, several schemes have been demonstrated [4–9] or proposed [10] to determine the duration of attosecond pulses, or even to fully characterize their temporal structure [11–13]. In this paper, we review several of these schemes, with the main objective of introducing a unified perspective of attosecond metrology, which is directly inspired from femtosecond metrology, although it represents a radical departure from conventional optics.

Today, femtosecond metrology allows us to completely characterize the temporal structure of ultrashort light pulses in the visible or near-visible range. Such a complete characterization of ultrashort light pulses with a slow, integrating detector, requires the use of at least one time-nonstationary filter [14] -e.g. an amplitude gate-, with a bandwidth which is typically a fraction of that of the field to be characterized. Because of the large bandwidth required, the unknown pulse itself is generally turned into a time-nonstationary filter, through the use of a nonlinear effect. However, nonlinear effects are in principle absolutely not required for ultrashort pulses metrology.

Because attosecond light pulses are in the xuv range and have only reached moderate intensities so far, using nonlinear effects for their characterization is challenging [9]. Most attosecond measurement methods therefore rely on a different approach (figure 1). Attosecond xuv fields can efficiently ionize



**Fig. 1.** General scheme of an attosecond metrology experiment. The attosecond field is first converted into a continuum electron wavepacket, through single photon photoionization. This photoionization occurs in the presence of an intense optical light pulse, which acts as a time-nonstationary phase filter on the electron wavepacket. A spectrometer then measures the energy spectrum of this modulated electron wavepacket.

atoms by single photon absorption. This ionization generates an attosecond electron wavepacket in the continuum, which, far from any resonance, is a replica of the attosecond field: the phase and amplitude of the xuv field are inherited to the photoelectron wavepacket. Direct information on temporal structure of this field can thus be obtained by characterizing this wavepacket,

a problem which is formally analog to the characterization of ultrashort light pulses. To this end, near-infrared or visible laser fields constitute ideal time-nonstationary filters: as we will demonstrate in the first part of this paper, such a dressing laser field essentially acts as an ultrafast phase modulator on the electron wavepacket. In the second part, we will show how this well-defined and controllable modulator enables to transpose techniques used for femtosecond pulses to the characterization of attosecond fields, using the electron wavepacket as an intermediate tool.

## 2 Theory of atomic xuv photoionization in a laser field

We first analyze the connection between an attosecond xuv field and the electron wavepacket it generates in the continuum when ionizing an atom. We then study the effect of a low-frequency laser field on the energy spectrum of this wavepacket. To this end, we first present a quantum model, which we use to connect this process with some concepts used in femtosecond metrology. We then detail a semiclassical model [15, 16], and show that it provides an intuitive understanding of the quantum model.

### 2.1 Electron wavepacket replica of an attosecond field

We consider the ionization of an atom by an attosecond field alone, and use the single active electron approximation. According to first order perturbation theory, at times large enough for the attosecond field to vanish, the transition amplitude  $a_{\mathbf{v}}$  from the ground state to the final continuum state  $|\mathbf{v}\rangle$  with momentum  $\mathbf{v}$ , is given by

$$a_{\mathbf{v}} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, \mathbf{d}_{\mathbf{v}} \mathbf{E}_X(t) e^{i(W+I_p)t}, \quad (1)$$

where  $W = \mathbf{v}^2/2$  is the energy of the final continuum state.  $\mathbf{E}_X(t)$  is the xuv electric field,  $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$  is the dipole transition matrix element from the ground state to the continuum state  $|\mathbf{v}\rangle$ , and  $I_p$  is the ionization potential of the atom. Note that atomic units are used throughout the paper.

Eq. (1) gives the connection between an attosecond field and the electron wavepacket it generates in the continuum when ionizing an atom. It shows that the photoelectron spectrum  $a_{\mathbf{v}}$  is directly related to the attosecond field spectrum, both in phase and amplitude.

The two spectra might differ in amplitude if  $|\mathbf{d}_{\mathbf{v}}|$  depends on  $\mathbf{v}$ . The ionization cross-section is generally well-known, which allows to correct for this dependence. Might it not be the case, the attosecond field spectral amplitude can be measured independently, using an xuv spectrometer.

The two spectra might differ in phase because of a possible phase dependence of  $\mathbf{d}_{\mathbf{v}}$  on  $\mathbf{v}$ , which can for instance be expected to occur near resonances

in the continuum. If this phase dependence is negligible, or is known either from theory or experiment, the spectral phase of the attosecond pulse can be directly deduced from the spectral phase of the electron wavepacket. Due to the limited bandwidth ( $\sim$  a few eV) of the attosecond fields generated until now, this correction has always been neglected so far.

With these restrictions in mind, the electron wavepacket can be viewed as a replica of the attosecond field that ionizes the atom. Its full characterization thus provides all the information on the temporal structure of the attosecond field, provided the response of the atom used as a converter is known. We now turn to the effect of a low-frequency laser field on the photoelectron spectrum.

## 2.2 SFA quantum model

In the case of xuv photoionization in the presence of a laser field, we use the strong field approximation (SFA) [17] in addition to the single active electron approximation. It consists in neglecting the effect of the ionic potential on the electron motion after ionization. This approximation has been shown to describe remarkably well the photoionization of atoms by a low-frequency laser field alone, provided this field is strong enough to dominate the ionic potential in the continuum. However, when the photoionization is induced by an xuv field of central frequency  $\Omega_X$ , requiring  $\Omega_X \gg I_p$  already ensures that the ionic potential can be neglected for continuum states. In this regime, the conditions on the laser field intensity are therefore much less stringent, and despite its name, the SFA approximation can be expected to be satisfactory even for moderate laser intensities.

Within these approximations, once both the attosecond field and the laser field have vanished, the transition amplitude  $a_{\mathbf{v}}(\tau)$  to the final continuum state  $|\mathbf{v}\rangle$  with momentum  $\mathbf{v}$ , for a delay  $\tau$  between the two fields, is given by

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i \left[ I_p t - \int_t^{+\infty} dt' \mathbf{p}^2(t')/2 \right]}. \quad (2)$$

$\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$  is the instantaneous momentum of the free electron in the laser field,  $\mathbf{A}(t)$  being the vector potential of this field in the Coulomb gauge, such that  $\mathbf{E}_L(t) = -\partial \mathbf{A}/\partial t$ . Note that if there is no laser field, this equation reduces to first-order perturbation theory (Eq. (1)) with respect to the xuv field.

This equation can be formally derived from the Schrödinger equation using SFA, but it also has a very intuitive interpretation.  $a_{\mathbf{v}}$  is the sum of the probability amplitudes of all electron trajectories leading to the same final velocity  $\mathbf{v}$ . The integral on  $t$  in Eq.(2) thus accounts for the fact that the xuv field can inject the electron in the continuum at any time  $t$ , with a probability amplitude equal to the instantaneous xuv field amplitude, multiplied by the dipole transition matrix element that corresponds to the momentum just after ionization. Knowing that the velocity is  $\mathbf{v}$  when the laser field vanishes

( $\mathbf{A}(t) = 0$ ), this momentum has to be  $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$  owing to canonical momentum conservation of the electron in the laser field. The exponential in the integral accounts for the phase of this process, which is the sum of the phase  $I_p t$  accumulated in the fundamental state until time  $t$ , and of the phase subsequently accumulated in the continuum. Within SFA, this last term is the Volkov phase, i.e. the integral of the instantaneous energy of a free electron in the laser field,  $\mathbf{p}^2(t')/2$ , from the ionization time  $t$  to the observation time.

To understand attosecond measurement techniques, a very useful form of this equation is obtained by rearranging the different terms of the integral in the exponential of Eq. (2):

$$a_{\mathbf{v}}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\phi(t)} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_X(t - \tau) e^{i(W + I_p)t} \quad (3)$$

$$\phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' (\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}(t') + \mathbf{A}^2(t')/2) \quad (4)$$

Comparing Eq.(1) and Eqs.(3-4) shows that the main effect of the laser field is to induce a temporal phase modulation  $\phi(t)$  on the electron wavepacket generated in the continuum by the xuv field. Because of the scalar product  $\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}$  in Eq.(4), the photoelectrons have to be observed in a given direction for the phase modulation to be well defined [4, 5, 7, 11]. In these conditions, the laser field acts on electron wavepackets just as a conventional phase modulator used in optics act on light pulses: we therefore consider it as an *ultrafast electron phase modulator*.

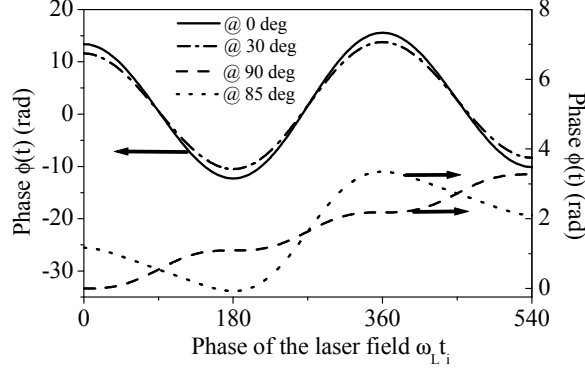
In this paper, we will concentrate on the use of linearly polarized laser fields. A simple expression of  $\phi(t)$  is then obtained if the envelop  $\mathbf{E}_0$  of the laser field  $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t) \cos(\omega_L t)$  is long enough to apply the slowly-varying envelope approximation, so that  $\mathbf{A}(t) = -\mathbf{E}_0(t)/\omega_L \sin(\omega_L t)$ . One then gets:

$$\begin{aligned} \phi(t) &= \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t) \\ \phi_1(t) &= - \int_t^{+\infty} dt U_p(t) \\ \phi_2(t) &= (\sqrt{8W U_p(t)}/\omega_L) \cos \theta \cos \omega_L t \\ \phi_3(t) &= -(U_p(t)/2\omega_L) \sin(2\omega_L t) \end{aligned} \quad (5)$$

$U_p(t) = E_0^2(t)/4\omega_L^2$  is the ponderomotive potential of the electron in the laser field at time  $t$ . The observation angle  $\theta$  is the angle between  $\mathbf{v}$  and the laser polarization direction.  $\phi_1(t)$  varies slowly in time, i.e. on the time scale of the laser pulse envelop, while  $\phi_2(t)$  and  $\phi_3(t)$  oscillate at the laser field frequency and its second harmonic, respectively. Figure 2 illustrates the typical temporal dependence of  $\phi(t)$  at different observation angles. We emphasize that around  $\theta = 0$ , the amplitude  $\Delta\phi$  of the phase modulation reaches large values ( $\Delta\phi > 2\pi$ ) even at moderate laser intensities, due to the  $\sqrt{W}$  factor in  $\phi_2(t)$ .

By providing a direct connection with the concepts used in femtosecond metrology, this quantum model constitutes the ideal framework to conceive

and analyze attosecond measurement techniques, as we will see in part 3. However, for a more intuitive picture of xuv photoionization in the presence of a laser field, we have to turn to a semiclassical treatment of this process.



**Fig. 2.** Phase modulation  $\phi(t)$  induced on the electron wavepacket, in different observation directions  $\theta$ , by a linearly polarized 800 nm laser field of 9 TW/cm<sup>2</sup> intensity ( $U_p \approx 0.54$  eV), for a final electron energy  $W = 100$  eV. Note the different vertical scales used for the different curves (see arrows). At  $\theta = 0$  and  $30^\circ$ , a phase modulation of large amplitude is induced even at this moderate laser intensity.

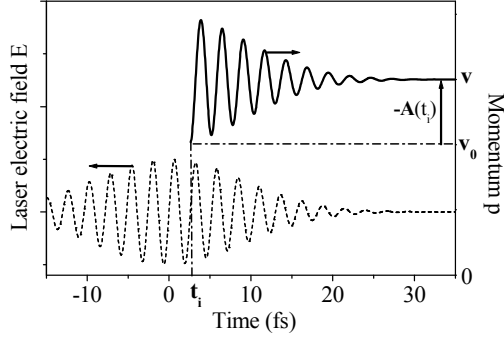
### 2.3 Semiclassical model

Physically, the large difference in frequencies between the xuv pulse and the laser pulse naturally divides the two-color photoionization process in two steps: absorption of an xuv photon followed by acceleration in the laser field [18, 19]. Classical mechanics can be used to describe the second step [15, 16].

We consider an electron ejected in the continuum by the xuv field at time  $t_i$ , with an initial kinetic energy  $W_0 = v_0^2/2 = \Omega_X - I_p$ , where  $\mathbf{v}_0$  is the initial velocity. Assuming  $\Omega_X \gg I_p$ , we neglect the influence of the ionic potential on the electron motion in the continuum. Using classical mechanics, the time-dependent momentum  $\mathbf{p}(t)$  in the continuum is then given by

$$\mathbf{p}(t) = \mathbf{A}(t) + [\mathbf{v}_0 - \mathbf{A}(t_i)] \quad (6)$$

The temporal evolution of  $|\mathbf{p}(t)|$  is illustrated on figure 3. The first term on the right hand side describes the electron quiver motion in the laser field (oscillations in figure 3) and goes to zero as the laser pulse ends. The second term in brackets is determined by the initial condition  $\mathbf{p}(t_i) = \mathbf{v}_0$  at the time of ionization. This constant term is the final drift velocity  $\mathbf{v}$  after the laser



**Fig. 3.** Temporal evolution of the momentum amplitude  $|\mathbf{p}(t)|$  of an electron injected in the continuum in the presence of an 800 nm linearly-polarized laser field, at a time  $t_i$  such that the laser electric field (dashed line) is 0. The initial electron velocity  $\mathbf{v}_0$  was assumed to be parallel to the laser polarisation.

pulse, which is measured experimentally. It differs from the velocity just after ionization  $\mathbf{v}_0$  by  $-\mathbf{A}(t_i)$ .

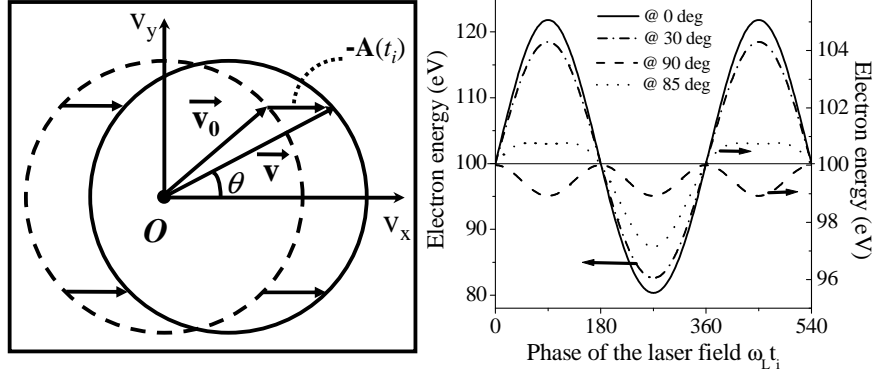
The effect of the laser field on the drift velocity can be visualized by plotting  $|\mathbf{v}|$  as a function of the observation angle  $\theta$  in polar coordinates [4, 5, 20] (figure 4, left panel). In the absence of the laser field, the electron final velocity is independent of  $\theta$ , and this distribution is a circle of radius  $|\mathbf{v}_0|$  centered on  $|\mathbf{v}| = 0$  (dashed circle). In the presence of the laser field, for a given  $t_i$ , this distribution remains a circle of the same radius, but its centre is now displaced from  $|\mathbf{v}| = 0$  by  $-\mathbf{A}(t_i)$  (full line circle). In a linearly polarized laser field, this circle thus oscillates back and forth along the polarization axis as  $t_i$  varies, while it experiences a circular motion around  $|\mathbf{v}| = 0$  for circular polarization. This representation shows that the laser field generally does not only change the electron final kinetic energy, but also deflects it from its initial propagation direction. For a linearly-polarized laser field, this deflection effect is maximum at  $\pi/2$  from the laser polarization, while the induced energy change is maximum at  $\theta = 0$ .

The drift kinetic energy  $W = \mathbf{v}^2/2$  is obtained by solving the second-order polynomial equation  $\mathbf{v}_0^2 = (\mathbf{v} + \mathbf{A}(t_i))^2$ , which leads for a linearly polarized laser field, and in the slowly-varying envelop approximation, to

$$W = W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2 \omega_L t_i \pm \alpha \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin \omega_L t_i \quad (7)$$

$$\alpha = \{1 - (2U_p/W_0) \sin^2 \theta \sin^2 \omega_L t_i\}^{1/2}$$

As before,  $\theta$  is the observation angle. For  $U_p < W_0/2$ , only the positive sign in Eq. (7) has a physical meaning. This equation shows how the energy change  $\delta W = W - W_0$  induced by the laser field varies with the observation angle  $\theta$  and the ionization time  $t_i$ . In figure 4 (right panel),  $W$  is plotted as a function of  $\omega_L t_i$  for different observation angles  $\theta$ . According to this model, the laser



**Fig. 4.** Right panel : drift kinetic energy  $W$  of a photoelectron as a function of its ionization phase  $\omega_L t_i$ , for four observation angles  $\theta$ , for the same set of parameters as in figure 2 (linearly-polarized dressing field,  $\lambda = 800$  nm,  $I = 9$  TW/cm<sup>2</sup>,  $U_p \approx 0.54$  eV, with  $W_0 = \Omega_X - I_p = 100$  eV). Note the two different energy scales used. These curves can be viewed as resulting from the oscillation with  $\omega_L t_i$  of the velocity circle (left panel) along the laser polarization direction of the laser field.

field leads to a periodic modulation of the drift kinetic energy of the electrons ejected in the continuum by the attosecond field. This idea is essential for a qualitative understanding of most attosecond measurement techniques.

## 2.4 Connection between quantum and semi-classical models

The SFA quantum model and the semiclassical model are closely related. Their connection can be analyzed formally by using the stationary phase method to integrate the first integral in Eq.(2) [6]. More qualitatively, if the xuv pulse is short compared to the laser field period, a linear expansion of the phase modulation  $\phi(t)$  with respect to time can be used in Eq. (3-5). Physically, a linear phase modulation on the electron wavepacket leads to a shift of its spectrum, as in the case of optical pulses. This shift is given by  $\delta W = W - W_0 = -\partial\phi/\partial t$ . Solving this equation for  $W$  leads to the same expression as in Eq. (7). In other words, the energy modulation  $W(t)$  (figure 4) given by the semi-classical model, and the phase modulation  $\phi(t)$  (figure 2) given by the SFA quantum model, are simply related by a time derivation.

The two models are thus strictly equivalent in the limit of xuv pulses much shorter than the laser period. The semiclassical model provides the intuitive basis to understand the quantum model. It shows that the classical trajectory of a photoelectron from its parent ion to the detector depends on its time of ionization within the laser field optical cycle (figure 3) : from a quantum point of view, the phase accumulated along the trajectory is thus temporally modulated by the dressing field.

To provide further insight into the connection between the two models, we define the Wigner distribution  $\Upsilon_\theta(t, W)$  of the photoelectron wavepacket in a given observation direction  $\theta$  as

$$\Upsilon_\theta(t, W) = \frac{1}{2\pi} \int dE a_\theta^*(W - E/2) e^{-iEt} a_\theta(W + E/2) \quad (8)$$

where  $a_\theta(W) = a_{\mathbf{v}}$  are the transition amplitudes given by Eq.(2). This is a particular case of time-frequency distribution [21] describing the electron wavepacket. Comparing the Wigner distributions obtained with and without the dressing laser field enables to visualize the effect of this field on the photoelectron wavepacket.

This is illustrated in figure 5, for two xuv pulses, the first one slightly shorter than the optical period of an 800-nm laser field (2.6 fs), and the second one slightly longer. These pulses are Fourier-transform limited : their Wigner distributions in the absence of the dressing field therefore look like horizontal ellipses (figure 5(a)-(c)).

In the central part of the shorter pulse, the dressing field induces a positive chirp on the electron wavepacket (figure 5(b)). On the edges, the sign of the chirp changes. As expected from the previous discussion, this behavior is qualitatively reproduced by the  $W(t)$  curve provided by the semiclassical model (full line in figure 5(b)).

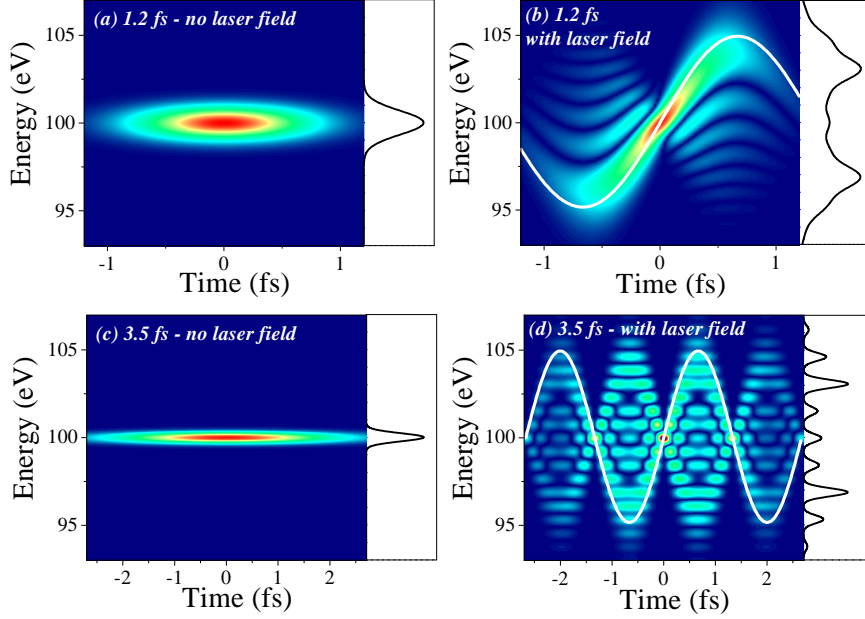
What misses in the semiclassical model, compared to the quantum model, are the interferences, in the spectral domain, between parts of the wavepacket emitted at different times but having the same final energy. Since the laser field induces a periodic energy modulation on the electron wavepacket, such interferences almost unavoidably occur for xuv fields comparable or longer than the laser optical period, e.g. fs trains of attosecond pulses or fs xuv pulses. Consequently, this regime can not be quantitatively described by the semi-classical model, although much of the underlying physics remains the same (figure 5(d)).

These interferences lead to modulations in the photoelectron spectrum, and appear as usual [21] as "islands" in the Wigner distribution. As the xuv pulse gets longer, they eventually lead to the appearance of well-separated sidebands in the photoelectron spectrum [22] (right panel in figure 5(d)), just as a periodic modulation applied on a light pulse induces satellites in its spectrum. These sidebands have been used to cross-correlate ultrashort (ps to fs) xuv pulses with the envelop of intense femtosecond laser pulses [22, 23]. We note that in this regime, the slowly-varying phase term  $\phi_1(t)$  in Eq.(5) is responsible for the ponderomotive shift [24] of the peaks in the photoelectron spectrum.

### 3 Attosecond measurement methods

We have shown that for electrons observed in a given direction relative to the laser polarization, a dressing low-frequency laser field essentially acts as an





**Fig. 5.** Wigner distributions of the electron wavepacket in the  $\theta = 0$  direction, for two Fourier-limited pulses, with and without the laser field. The panels on the right show the photoelectron energy spectrum (marginal of the Wigner distribution).  $\mathbf{d}_v$  was assumed to be constant for this calculation. The Wigner distributions in (a) and (c) are therefore identical to that of the attosecond xuv pulses (1.2 fs FWHM in (a)-(b), 3.5 fs in (c)-(d), with  $\Omega_X - I_p = 100$  eV). The laser field has an intensity of  $0.5 \text{ TW/cm}^2$  ( $\lambda = 800 \text{ nm}$ ,  $U_p = 0.03 \text{ eV}$ ), and its phase is such that the electric field is maximum at the maximum of the xuv pulse. The full lines in (b) and (d) show the photoelectron final energy  $W$  as a function of  $t_i$ , as deduced from the semiclassical model.

ultrafast phase modulator on the electron wavepacket. Analyzing the classical trajectories of the electrons after ionization reveals the physics underlying this phase modulation.

In this part of the paper, we first discuss the general properties of this modulator for a linearly-polarized laser field, and show why it is an adequate tool for attosecond metrology. We then describe how it enables to transpose some of the techniques used for the characterization of visible femtosecond pulses to attosecond electron wavepackets, and hence to attosecond xuv fields.

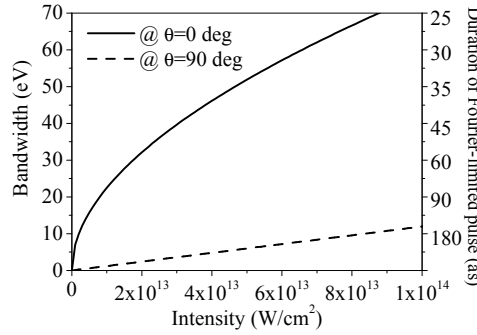
### 3.1 General properties of the electron phase modulator

In optical pulses metrology, time-nonstationary *phase* filters, such as fast electro-optic phase modulators, enable a variety of powerful techniques for the complete temporal characterization of ultrashort light pulses, such as SPIDER

or FROG [14, 25–27]. Amplitude filters are thus not absolutely necessary, although they can also be used as a nonstationary filter, and might at first sight appear to be more adequate and intuitive [28].

For attosecond metrology, this suggests that the dressing laser field might provide an adequate time-nonstationary phase filter for the characterization of electron wavepackets generated in the continuum by attosecond fields. To this end, an essential requirement is that this filter should be fast enough : in practical terms, its bandwidth should be a significant fraction of that of the attosecond field to be characterized, which will typically range from a few eV to several tens of eV. The bandwidth of this filter can be defined as the maximum value in time of  $|\partial\phi/\partial t|$ . Following the semiclassical model, this corresponds to the maximum energy shift of the photoelectron spectrum that is induced by the laser field. Using the long laser pulse expression of  $\phi(t)$  (Eq.(5)), this quantity is easily calculated, and is plotted as a function of the laser intensity in figure 6, for two observation angles, 0 and  $\pi/2$ .

The bandwidth obviously increases with the laser intensity. Due to the fast oscillations in  $\phi(t)$ , and to the large amplitude of the phase modulation (figure 2), it reaches several tens of eV at  $\theta = 0$ , and several eV at  $\theta = \pi/2$ , for laser intensities of a few  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ . This multi-PHz bandwidth makes near-visible laser fields ideal nonstationary filters for attosecond measurement. The temporal resolution that can be achieved for a given bandwidth of the modulator depends on the specific measurement technique that is implemented. We note that, in parallel to the fast oscillations of  $\phi(t)$ , the envelope of the laser pulse also leads to a slow temporal evolution, which allows to determine the femtosecond temporal structure of trains of *as* pulses [13].



**Fig. 6.** Bandwidth  $\Delta E = |\partial\phi/\partial t|_{max}$  of the electron phase modulator as a function of the intensity of an 800 nm laser field, for  $W = 100 \text{ eV}$ . The vertical scale on the right shows the duration  $\Delta t \propto 1/\Delta E$  of a Fourier-limited light pulse of the same bandwidth. This duration provides a *rough* estimate of the temporal resolution that can be achieved for a given bandwidth of the modulator.

The filter bandwidth is not the only relevant criterion for the choice of the experimental conditions, and in particular of the observation angle. From an experimental point of view, the angular acceptance of the measurement is also an essential parameter, as it will to a large extent determine the magnitude of the available electron signal.

In most practical situations,  $U_p \ll W$ , so that, going back to Eq.(5),  $\phi_2(t)$  predominates over  $\phi_1(t)$  and  $\phi_3(t)$  for almost all angles except  $\theta \approx \pi/2$ . As a result,  $\phi(t)$  varies as  $\cos\theta$  over a large angular range, and thus has a slow variation around  $\theta = 0$ . In contrast, it strongly varies with  $\theta$  around  $\pi/2$ , as  $\phi_1(t)$  and  $\phi_3(t)$  dominates only in a restricted angular range around this direction. These features clearly appear on figure 2.

Measurements around  $\theta = 0$  can thus be performed with a large angular acceptance (typically up to  $\pm 40^\circ$  [11, 13]), which exact value depends on the relative magnitudes of  $U_p$  and  $W$ . However, one specificity of the  $\phi_2(t)$  term, which dominates in this angular range, is that it depends on the final electron energy  $W$ . The phase modulation experienced by an electron wavepacket is hence not homogenous across its spectrum. All measurement methods presented in this paper, and more generally most methods used in femtosecond metrology, assume a phase modulation that is independent of energy. This dependence will thus generally introduce systematic errors in the retrieved attosecond pulse if it has a large bandwidth ( $\Delta W \approx W$ ). Such systematic errors might in some cases be corrected for. They never occur at  $\theta = \pi/2$ , where  $\phi_1(t)$  and  $\phi_3(t)$  dominates, but measurements then have to be carried out with a much smaller collection angle (typically a few degrees).

We now turn to the different ways of using this time-nonstationary filter for the characterization of attosecond fields.

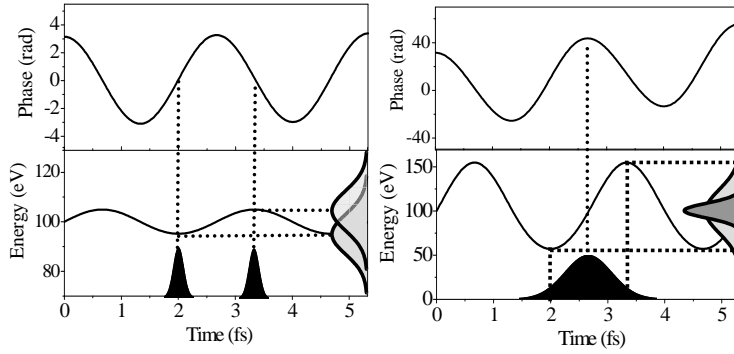
*Remark 1.* We note that in some cases, the dependence of  $|\mathbf{d}_v|$  on either the amplitude of  $\mathbf{v}$  or its direction might not be negligible. According to Eq. (3), the laser field then also induces a temporal amplitude modulation on the electron wavepacket, through the temporal dependence of  $\mathbf{p}(t) = \mathbf{v} + \mathbf{A}(t)$  in  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}$ . Qualitatively, this is again due to the fact that the final velocity magnitude and direction are different from the ones just after ionization, and depend on the ionization phase. This effect could in principle be exploited to obtain a time-nonstationary *amplitude* filter for attosecond measurements. However, this interesting possibility has hardly been explored so far, and will not be considered here.

### 3.2 Attosecond SPIDER [11]

Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction (SPIDER) [29] is one method for the complete characterization of ultrashort light pulses in the visible. SPIDER measures the relative phases of the different frequency components. To this end, a frequency shear  $\Delta\Omega$  is induced between two replicas of the light pulse to be characterized, delayed by a time  $\Delta t$ .

These two frequency-shifted twin-pulses interfere in the frequency domain, and because of the time delay  $\Delta t$ , the total power spectrum has fringes. The frequency shear  $\Delta\Omega$  causes a modulation to the positions of these fringes, which provides the information required to retrieve the slowly-varying spectral phase.

SPIDER can be adapted to short attosecond pulses, using continuum electron wavepackets as an intermediate tool (figure 7, left graphs). Two identical and time-delayed electron wavepackets can be produced by ionizing an atom with two time-delayed replicas of the attosecond pulse to be characterized (figure 7). Producing a time-delayed duplicate of an xuv pulse with a large spectral bandwidth is experimentally difficult, but it could be achieved by using a dispersionless Michelson interferometer [30] or the zeroth-order reflection of a laminar grating [11]. By choosing appropriate observation angle and ionization phases, a dressing laser field then induces the required energy shear  $\Delta W$  between these two wavepackets. We emphasize that a controlled spectral shifting has already been demonstrated experimentally for a single electron wavepacket [31].



**Fig. 7.** Two different ways of synchronizing the electron phase modulator with attosecond pulses, for attosecond measurements. The black gaussians sketch the pulse temporal envelope, while the grey ones correspond to the photoelectron energy spectrum. Left graph : configuration used for a SPIDER measurement. The  $\phi(t)$  and  $W(t)$  curves correspond to  $\theta = 0$ ,  $W = 100$  eV,  $I = 0.5$  TW/cm<sup>2</sup>, and  $\lambda = 800$  nm. Right graph : synchronization used for streak-camera measurements (same conditions, except that  $I = 50$  TW/cm<sup>2</sup>). The dark and light grey gaussians respectively correspond to the unstreaked and streaked spectra. Note the different phase and energy scales used on the two sets of graphs.

It is essential to avoid inducing spectral distortions when shearing the twin wavepackets in energy : this implies that the attosecond pulse has to be significantly shorter than the optical period of the dressing laser field. The phase modulation  $\phi(t)$  can then be approximated by a linear expansion with

respect to time. This leads to a shift  $\delta W = -\partial\phi/\partial t$  of the photoelectron spectrum given by Eq.(7).

The delay  $\tau$  with the dressing field and the time separation  $\Delta t$  between the twin pulses have to be chosen so that the two wavepackets experience different energy shifts  $\delta W$  (figure 7). Besides, the linear expansion of  $\phi(t)$  is most accurate, and the distortion of the spectrum is the weakest, when  $\partial^2\phi/\partial t^2 = \partial\delta W/\partial t = 0$  at  $t = \tau$  and  $t = \tau + \Delta t$ . These two conditions determine the most adequate arrival times for the two attosecond pulses with respect to the laser field oscillation. For example, at  $\theta = \pi/2$ , this leads to  $\omega_L\tau = 0$  and  $\omega_L\Delta t = 2\pi(n/2 + 1/4)$ , with a corresponding energy shear of  $2U_p$ , while at  $\theta = 0$ ,  $\omega_L\tau = \pm\pi/2$  and  $\omega_L\Delta t = 2\pi(n + 1/2)$ , with an energy shear of  $\sqrt{32W_0U_p}$ .

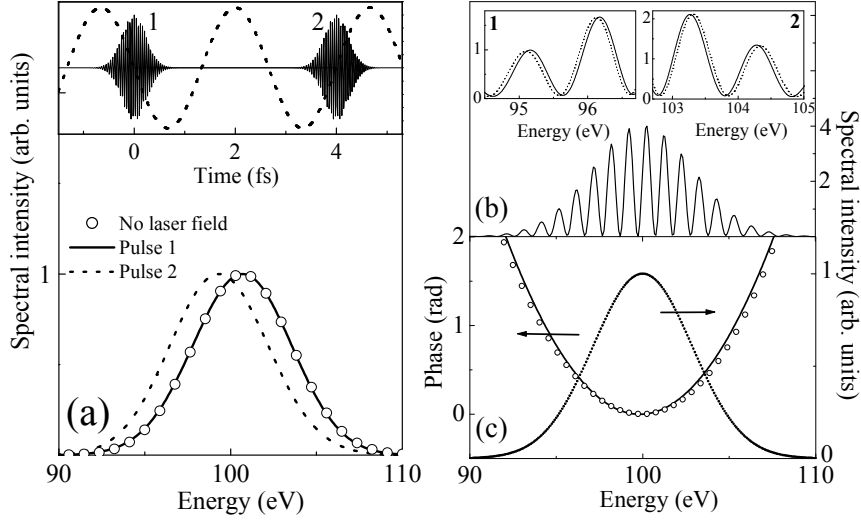
At angles other than  $\theta \approx \pi/2$ , a residual distortion of the photoelectron spectrum always occurs, because of the dependence of  $\phi_2(t)$ , and hence  $\delta W$ , on  $W$ . This can lead to systematic errors in the retrieved phase. However, such errors can easily be corrected by modifying the conventional SPIDER reconstruction algorithm, to take into account this predictable distortion of the spectrum.

Since there is no fundamental limitation to the temporal resolution of attosecond SPIDER, and since it requires a filter bandwidth that is small compared to the pulse bandwidth ( $\approx 10\%$ ), this method opens the route to the complete characterization of extremely short xuv pulses [11]. The numerical results presented in figure 8 show that it should also allow measurement of currently accessible pulses : using parallel observation ( $\theta = 0$ ) and an 800-nm 10-GW/cm<sup>2</sup> shearing field, the spectral phase of a 400-asec pulse centered at  $\approx 100$  eV is satisfactorily reconstructed. Note that the twin pulses are separated by 1.5 periods, to obtain a sufficient number of fringes in the photoelectron spectrum.

Numerical calculations show that 400-asec pulses are near the upper limit for accurate reconstruction using 800-nm shearing fields. Beyond this duration, the photoelectron spectrum is distorted by the dressing field, and attosecond SPIDER loses its accuracy. We will now see how such distortions can be exploited for attosecond measurements.

### 3.3 Attosecond streak camera [5]

As shown in part 2.3, an electron wavepacket generated by xuv photoionization can be deflected and accelerated by a strong laser field, and both effects depend on the phase of the laser field at the time of ionization. The basic idea of the attosecond streak camera is to use this phase dependence to map the temporal structure of the wavepacket on its energy or angular distribution. Measuring this distribution then allows to evaluate the duration of xuv pulses shorter than the optical cycle. There are many possible configurations of this attosecond streak camera, depending on the laser field polarization and on the measurements performed on the photoelectrons [5].



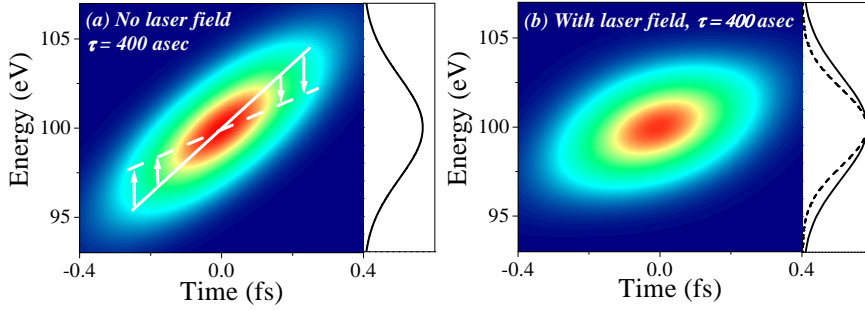
**Fig. 8.** (a) Photoelectron spectra at  $\theta = 0$ , produced by each of the two xuv pulses shown in the top inset (400 asec chirped pulses, 6.5 eV spectral bandwidth,  $\Omega_X - I_p = 100$  eV) in the presence of a laser field ( $\lambda = 800$  nm,  $I = 10^{-2}$  TW/cm<sup>2</sup>, energy shear  $\Delta W \approx 1.4$  eV). The open circles show the spectrum obtained in the absence of the laser field (shifted in energy for comparison with the sheared spectrum). The dashed line in the inset shows the laser electric field. (b) Photoelectron spectrum obtained when both pulses successively excite the atom in the laser field. Insets 1 and 2 compare the interference patterns obtained with unchirped (270 asec, full line) and chirped (400 asec, dashed line) pulses. (c) Comparison between the spectral phase retrieved from this SPIDER spectrum (circles) and the exact spectral phase  $\varphi(W)$  (full line). The dotted line shows the spectral intensity.

In the only configuration implemented so far [4, 7], the laser field is linearly polarized and the photoelectron spectrum is measured in a single direction. As opposed to the case of attosecond SPIDER, the best configuration now corresponds to the attosecond pulse being synchronized with the dressing field so that  $|\partial^2 \phi / \partial t^2| = |\partial \delta W / \partial t|$  is maximum. The photoelectron wavepacket is then streaked in energy by the laser field, with a maximum streaking speed (figure 7, right graphs). The resulting change in the width of the photoelectron spectrum is related not only to the duration, but also to the linear chirp of the xuv pulse.

This is illustrated on figure 9(a-b), which displays the Wigner distribution of a positively chirped x-ray pulse streaked with a negative energy streaking speed  $\partial \delta W / \partial t < 0$ . This shows that the energy streaking does not necessarily leads to a spectral broadening, but can in certain conditions induce a narrowing of the spectrum. Only for Fourier-limited or negatively chirped pulse does this negative streaking always widen the spectrum. Knowing the unstreaked

and streaked spectra, as well as the streaking speed, the pulse duration and chirp of simple pulses can thus be estimated.

For this method to apply, the attosecond pulse should be shorter than half the laser period at  $\theta = 0$ , and a quarter of this period at  $\theta = \pi/2$ , so that the streaking remains linear in time. On the other hand, if the pulse gets too short, the wavepacket is hardly streaked by the laser field, and the induced width change gets negligible compared to its initial spectral width. The resulting resolution limit depends on the maximum streaking speed that can be achieved, which is in turn determined by the maximum laser intensity that can be applied to the atoms. The exact value of this resolution limit depends on the experimental parameters (e.g. noise and spectrometer resolution), but it can reasonably be estimated to be of the order of 100 *as* for an electron energy of 100 eV [5, 7].



**Fig. 9.** Wigner distributions and energy spectra of the photoelectron wavepacket at  $\theta = 0$ , for a chirped 400 *as* pulse (same as in figure 8), with and without the dressing laser field. In the right panel of (b), the photoelectron spectra with (dashed line) and without (full line) the laser field are compared. The arrows in (a) sketch the streaking effect ( $\partial\delta W/\partial t < 0$ ) of the laser field on the photoelectron energy ( $\lambda = 800$  nm,  $I = 0.25$  TW/cm<sup>2</sup>, pulse synchronized with the minimum of the optical cycle).

### 3.4 Beyond the attosecond streak camera: chronocyclic tomography

The attosecond streak camera method was initially proposed to estimate the duration and linear chirp of single attosecond pulses with simple temporal structures. Using the concepts of tomography, it has now been improved to allow their full temporal characterization. This is possible because, beyond its width, the detailed shape of the streaked spectrum contains information on the exact temporal structure of the pulse, including high-order terms in the spectral phase  $\varphi(W)$  [32]. As first emphasized in [33], a technique called simplified chronocyclic tomography, recently developed for ultrashort visible

pulses metrology [26], can be directly transposed to attosecond pulses, and allows for a full reconstruction using a very limited number of streaked spectra.

The idea underlying simplified chronocyclic tomography is that a streaking in energy corresponds, to first order, to a rotation of the Wigner distribution  $\mathcal{Y}(t, W)$  in chronocyclic space, as illustrated in figure 9. Given that an energy spectrum is a projection of the Wigner distribution along the energy axis, measuring this spectrum for different streaking speeds provides projections of  $\mathcal{Y}(t, W)$  along different directions. Like in conventional tomography, reconstructing the full Wigner distribution would require to perform such measurements for many rotation angles, which is not possible using only an energy streaking. On the opposite, simplified chronocyclic tomography only requires a few rotations, by taking advantage of the fact that a partial information on the Wigner distribution generally suffices to reconstruct the temporal profile of the pulse.

For a streaking speed  $\alpha = dW/dt$ , the measured streaked spectrum  $S_\alpha$  is given by

$$S_\alpha(W) = \int \mathcal{Y}(t, W - \alpha t) dt \quad (9)$$

It is then easy to demonstrate that

$$\frac{\partial S_\alpha}{\partial \alpha} = -\frac{\partial}{\partial W} \int t \mathcal{Y} dt \quad (10)$$

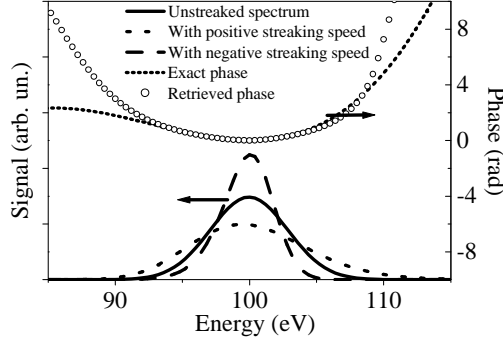
Knowing that the group delay  $\partial\varphi/\partial W$  is equal to the first order temporal moment of the Wigner distribution,  $\partial\varphi/\partial W = \int t \mathcal{Y} dt / \int \mathcal{Y} dt$ , this finally leads to

$$\frac{\partial S_\alpha}{\partial \alpha} = -\frac{\partial}{\partial W} [S_0 \frac{\partial \varphi}{\partial W}] \quad (11)$$

where  $S_0 = \int \mathcal{Y} dt$  is the unstreaked spectrum. Thus, knowing the first-order derivative of the spectrum with respect to the streaking speed  $\alpha$ , for all energies  $W$ , the group delay can be determined by a simple step-by-step integration in energy. This also requires the knowledge of the unstreaked spectrum  $S_0$ , which should be free of spectral gaps.

This method thus relies on the accurate determination of  $\partial S_\alpha(W)/\partial \alpha$  at  $\alpha = 0$ . This derivative can be estimated to second order in  $\alpha$ , using only the unstreaked spectrum  $S_0$  and one streaked spectrum  $S_{\alpha_1}$ . However, using two streaked spectra  $S_{\alpha_1}$  and  $S_{-\alpha_1}$ , corresponding to two opposite streaking speeds,  $[S_{\alpha_1} - S_{-\alpha_1}]/2\alpha_1$  provides a more accurate estimate, to third-order in  $\alpha$ .  $S_0$ ,  $S_{\alpha_1}$  and  $S_{-\alpha_1}$  are shown in figure 10 for a pulse with a spectral phase composed of second and third-order terms. The spectral phase retrieved from these spectra is compared to the exact  $\varphi(W)$ , and a satisfactory agreement is observed. To get a better accuracy on  $\partial S_\alpha/\partial \alpha$ , or for measurements with large streaking speeds, spectra should be measured for a larger number of streaking speeds, thus enabling to eliminate higher order terms in the polynomial expansion of  $S_\alpha$  around  $\alpha = 0$ .





**Fig. 10.** Unstreaked spectrum  $S_0$  and streaked spectra  $S_{\alpha_1}$  and  $S_{-\alpha_1}$  for two opposite streaking speeds ( $\alpha_1 \approx 10$  eV/fs, obtained with  $\lambda = 800$  nm,  $I = 0.4$  TW/cm<sup>2</sup>,  $\theta = 0$ , and the pulse centered at extrema of the optical cycle), for a 345 assec pulse which spectral phase is a combination of third-order and positive second-order terms. This spectral phase is compared to the one retrieved by applying the treatment described in the text to these three spectra. Data courtesy of V. Yakovlev.

We emphasize that in this issue, V. Yakovlev and coworkers propose another novel approach, also derived from tomographic techniques, to fully reconstruct the pulse from a larger ensemble of streaked spectra.

### 3.5 FROG CRAB [13]

The different methods we have described so far are restricted to attosecond fields shorter than the optical period of the dressing laser field. We now describe a technique that does not suffer from this restriction : frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts (FROG CRAB [34], hereafter called CRAB).

CRAB is inspired from frequency-resolved optical gating (FROG), a widely used technique for the full temporal characterization of visible femtosecond pulses [35]. FROG consists in decomposing the pulse to be characterized in temporal slices thanks to a temporal gate  $G(t)$ , and then measuring the spectrum of each slice. This provides a two-dimensional set of data, called a spectrogram or FROG trace, given by

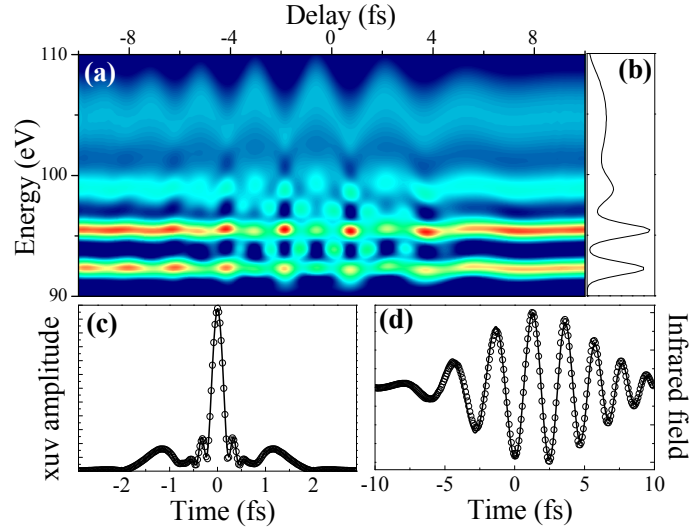
$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt G(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} \right|^2 \quad (12)$$

where  $E(t)$  is the field of the pulse to be characterized, and  $\tau$  is the variable delay between the gate and the pulse. The gate may either be a known function of the pulse,  $G(t) = F[E(t)]$ , as in most implementations of FROG, or an unrelated -and possibly unknown- function (blind-FROG) [36]. Various iterative algorithms, such as the very efficient principal component generalized

projections algorithm (PCGPA) [36], can then be used to extract both  $E(t)$  and  $G(t)$  from  $S(\omega, \tau)$ .

In the case of attosecond fields, comparing Eq.(3) with the FROG equation (12) shows that a dressing laser field, acting as an electron phase modulator, can be used as a temporal phase gate for FROG measurements on photoelectron wavepackets. Indeed, although the FROG technique is best understood qualitatively by considering measurements performed with amplitude gates  $G(t) = f(t) \in \mathbb{R}$ , pure phase "gates"  $G(t) = e^{i\phi(t)}$  can also be used [27]. They provide spectrograms that are generally not very intuitive, but that contain all the information required for the full reconstruction of the pulse and the gate.

One essential advantage of CRAB compared to other techniques is its versatility : it applies to attosecond fields of arbitrarily complex temporal structure [13]. This is illustrated in figure 11, which shows the CRAB trace of a rather complicated attosecond field, obtained with a 800 nm 7 fs chirped laser pulse as a phase gate. The spectrum of this field qualitatively corresponds to what would be obtained by selecting the end of the plateau and the cut-off of the high-harmonic spectrum generated in a gas by a few-cycle laser pulse. The spectral phase was assumed to be constant.



**Fig. 11.** (a) CRAB trace of a complex attosecond field, whose spectrum is shown in panel (b). The spectral phase is constant. In (c), the exact temporal amplitude profile (full line) is compared to the one retrieved from this CRAB trace (dots) using PCGPA. The field of the laser pulse used as a gate for this measurement ( $\lambda = 800$  nm and  $I = 0.05$  TW/cm<sup>2</sup>) is shown in (d) (full line), and is also compared to the field retrieved from the CRAB trace (dots). The observation angle is  $\theta = 0$ .

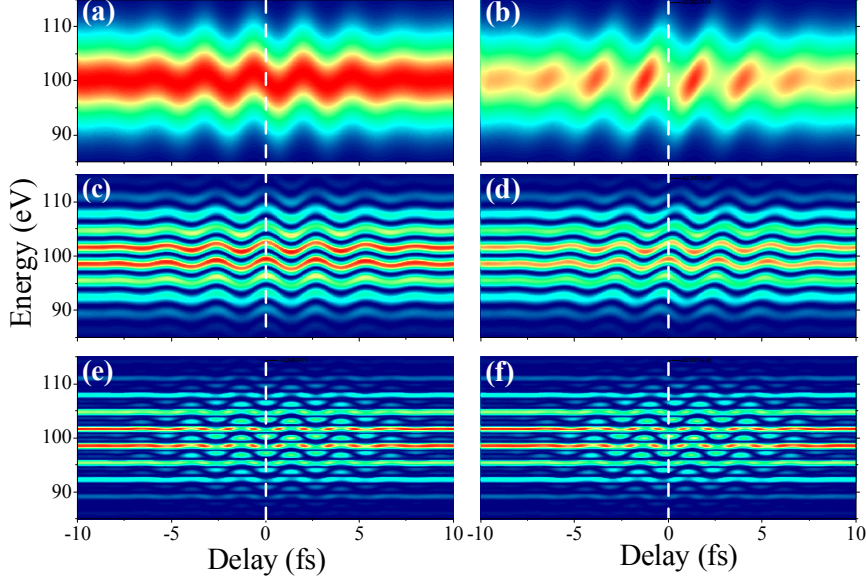
The corresponding temporal profile is composed of a main central peak of  $\approx 200$  as duration, surrounded by two much weaker satellite peaks at  $\pm 1.3$  fs (i.e. half the optical period  $T$  of the dressing laser field). These satellites originate from the narrow peaks in the lower part of the spectrum, while the whole spectrum contributes to the central burst. The temporal amplitude profile of the attosecond field retrieved from this CRAB trace after 200 iterations of PCGPA is in excellent agreement with the exact profile (figure 11(c)).

As shown in the lower right graph, the laser field  $\mathbf{E}_L(t)$  used for this measurement can also be deduced from the CRAB trace. This is possible because PCGPA retrieves the phase gate  $e^{i\phi(t)}$ . For measurements around  $\theta = 0$ , terms of second order in  $\mathbf{A}(t)$  can generally be neglected in Eq.(4):  $\mathbf{E}_L(t)$  can then be derived from  $\phi(t)$  using  $\mathbf{v} \cdot \mathbf{E}_L(t) \approx -\partial^2 \phi / \partial t^2$ . We emphasize that despite its strong chirp, this laser pulse is perfectly suitable for CRAB measurements.

Due to the complicated gate that is used, it is at first sight difficult to identify what features of the CRAB trace of figure 11 contain the information on the temporal structure of the attosecond field. Analyzing the CRAB traces of simpler attosecond fields (figure 12) provides some insight, and allows to identify two main relevant structures in this trace: the overall oscillations of the continuous upper part, and the oscillating side-bands in the discrete lower part.

The two upper graphs of figure 12 show the CRAB traces of single attosecond pulses (Fourier-limited pulse in (a), chirped pulse in (b)). For a given delay  $\tau_0$ , the spectrum  $S(\omega, \tau_0)$  can be considered as a streak camera spectrum, each delay corresponding to a different streaking speed. Like in chronocyclic tomography, the information on the temporal structure of the pulse is thus obtained through different rotations of the Wigner distribution. A pattern that closely resembles these traces is observed in the upper part of the CRAB trace of figure 11: the information on the temporal structure associated to this continuous part of the spectrum is thus obtained through streaking.

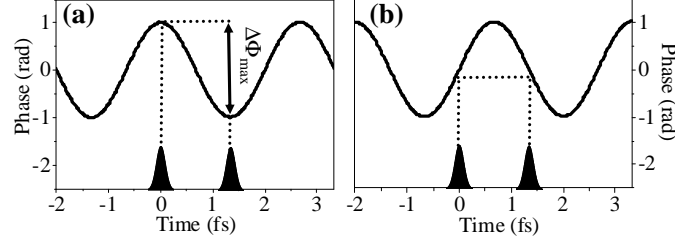
The two middle graphs of figure 12 display the CRAB traces obtained when a second identical pulse is added to the first one, with a time shift of half an optical period  $T$ . Although an energy streaking still occurs, another effect dominates here. Because the field is composed of two time-shifted replicas, the spectrum now present fringes spaced by  $2/T \approx 3$  eV. Since the two pulses are separated by half an optical cycle, they do not experience the same phase modulation by the laser field (figure 13). The phase difference  $\Delta\phi = \phi(\tau + T/2) - \phi(\tau)$  depends on the delay between the laser field and the attosecond pulses, and induces a shift of the spectral fringes. This shift is maximum twice every optical period, for delays such as shown on figure 13(a), while no shift occurs for delays such as shown on figure 13(b), where the induced phase difference is 0. The spectral fringes thus oscillate at the laser frequency when the delay is scanned.



**Fig. 12.** CRAB traces of simple attosecond fields, at  $\theta = 0$ , with  $I=0.05 \text{ TW/cm}^2$  and  $\lambda = 800 \text{ nm}$ . In (a), the field is a single Fourier-limited attosecond pulse of  $150 \text{ as}$  duration, while in (b) it consists of a single chirped attosecond pulse of the same bandwidth and  $620 \text{ as}$  duration. In (c) and (d), a second identical pulse was added to these fields, shifted in time by  $T/2 \approx 1.3 \text{ fs}$ . In (e) and (f), the field is composed of four identical pulses with  $T/2$  between successive pulses.

When the attosecond pulses are Fourier limited, the maximum phase shift  $\Delta\phi_{max}$  occurs at the same delays for all frequencies, and the fringes oscillate in phase all across the spectrum (figure 12(c)). In contrast, for a chirped pulse, the different frequency components are linearly separated in time, and thus experience this maximum phase shift at different delays. The phase of the fringe oscillations then varies linearly across the spectrum (figure 12(d)).

The two lower graphs of figure 12 show the evolution of the CRAB traces when more such pairs of pulses are added to the  $as$  field, every optical period  $T$ . Due to the periodic repetition of the same pattern, discretized versions of the previous traces (c)-(d) are obtained, with a sampling step of  $1/T \approx 1.5 \text{ eV}$ : the oscillating fringes turn into sidebands oscillating at twice the laser frequency. Consequently, the phases of these sideband oscillations provide the group delay (i.e. the arrival time) of the different spectral components of the attosecond pulses, as already shown for attosecond trains [37]. This group delay is independent of frequency for Fourier-limited pulses (figure 12(e)), and varies linearly for chirped ones (figure 12(f)). A pattern similar to these traces is observed in the lower part of the CRAB trace of figure 11: this is mostly where the information on the satellite pulses of figure 11 lie.



**Fig. 13.** Two different synchronizations of the laser-induced phase modulation  $\phi(t)$  at  $\theta = 0$  with a pair of attosecond pulses spaced by  $T/2 \approx 1.3$  fs. In (a), the field induces a maximum phase shift between the two wavepackets generated by these pulses, which leads to a shift of the spectral fringes. In (b), the delay has been increased by  $T/4$ : no phase shift is induced, and the positions of the spectral fringes are not affected. The  $\phi(t)$  curve was obtained with  $W = 100$  eV,  $I = 0.05$  TW/cm<sup>2</sup>, and  $\lambda = 800$  nm.

CRAB is an extremely powerful technique for the characterization of attosecond fields, which directly benefits from the extensive researches that have been carried out on FROG [35]. It establishes a direct and unexpectedly simple connection between the technique used in [4, 7] for single *as* pulse, and the technique used in [8] for attosecond trains. CRAB provides the first systematic and straightforward procedure to retrieve the full temporal structure of the laser pulse and the *as* bursts from such measurements.

## 4 Conclusion

Most techniques used to characterize femtosecond light pulses can be transposed to attosecond xuv pulses, using photoelectron wavepackets as an intermediate tool. A dressing laser field acting as an ultrafast electron phase modulator enables to characterize these wavepackets, and thus to fully retrieve the temporal structure of xuv fields.

This modulator is naturally synchronized with the attosecond fields obtained by high-harmonics generation in gases, and its frequency is perfectly determined by the laser wavelength and the direction of observation of the photoelectrons : it is thus an ideal time reference for temporal characterization with attosecond precision. The amplitude of the modulation can also be controlled by the laser intensity. Based on these ideas, a scheme called FROG CRAB has recently been proposed [13], which for the first time enables the full temporal characterization of *arbitrary* attosecond xuv fields.

These characterization techniques are likely to have an impact on attosecond science that goes beyond the temporal characterization of attosecond pulses : as in the experiment presented in [1], they could indeed be applied to the characterization of electron wave packets that result from processes more

complex than the direct photoionization of atoms or molecule, such as Auger relaxation. In such an experiment, an attosecond pulse would be used to impulsively trigger an ultrafast process, and the resulting wavepacket generated in the continuum would be characterized in phase and amplitude using one of the techniques described in this paper.

#### Acknowledgements

F. Quéré gratefully acknowledges V. Yakovlev for discussions on chronocyclic tomography and for providing the data of figure 10.

#### References

1. M. Drescher et al. *Nature*, 439:803, 2002.
2. H. Niikura et al. *Nature*, 417:917, 2002.
3. H. Niikura et al. *Nature*, 421:826, 2003.
4. M. Hentschel et al. *Nature*, 414:509, 2001.
5. J. Itatani et al. *Phys. Rev. Lett.*, 88:173903, 2002.
6. M. Kitzler et al. *Phys. Rev. Lett.*, 88:173904, 2002.
7. R.Kienberger et al. *Nature*, 427:817, 2004.
8. P. M. Paul et al. *Science*, 292:1689, 2001.
9. P. Tzallas et al. *Nature*, 426:267, 2003.
10. A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec. *Phys. Rev. Lett.*, 86:412, 2001.
11. F. Quéré, J. Itatani, G.L. Yudin, and P.B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.*, 90:073902, 2003.
12. H. G. Muller. *Appl. Phys. B*, 74:S17, 2002.
13. Y. Mairesse and F. Quéré. *submitted to Phys. Rev. Lett.*, 2004.
14. I.A. Walmsley and V. Wong. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13:2453, 1996.
15. T. F. Gallagher. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2304, 1988.
16. P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel. *Phys. Rev. Lett.*, 62:1259, 1989.
17. M. Lewenstein et al. *Phys. Rev. A*, 49:2117, 1994.
18. A. M. Dykhne and G. L. Yudin. *Sov. Phys. Usp.*, 20:80, 1977.
19. A. M. Dykhne and G. L. Yudin. *Sov. Phys. Usp.*, 21:549, 1978.
20. M. Drescher et al. *Science*, 291:1923, 2001.
21. L. Cohen. *Proc. of the IEEE*, 77:941, 1989.
22. J. M. Schins et al. *Phys. Rev. Lett.*, 73:2180, 1994.
23. T. E. Glover et al. *Phys. Rev. Lett.*, 76:2468, 1996.
24. E. S. Toma et al. *Phys. Rev. A*, 62:061801(R), 2000.
25. C. Dorrer and I. Kang. *Opt. Lett.*, 28:477, 2003.
26. C. Dorrer and I. Kang. *Opt. Lett.*, 28:1481, 2003.
27. M.D. Thomson, J.M. Dudley, L.P. Barry, and J.D. Harvey. *Opt. Lett.*, 23:1585, 1998.
28. C. Dorrer and I. Kang. *Opt. Lett.*, 27:1315, 2002.
29. C. Iaconis and I. A. Walmsley. *Opt. Lett.*, 23:792, 1998.
30. E. Goulielmakis. *Appl. Phys. B*, B74:197, 2002.
31. R.Kienberger et al. *Science*, 297:1144, 2002.
32. F.Quéré et al. *Ultrafast Optics IV*. Springer, New York, 2004.
33. E.M Kosik et al. *Ultrafast Optics IV*. Springer, New York, 2004.
34. <http://www.dpi.qld.gov.au/fishweb/2455.html>.

- 35. R. Trebino, editor. *Frequency-Resolved Optical Gating*. Kluwer Academic Publishers, 2000.
- 36. D.J. Kane. *IEEE J. Quant. Elec.*, 35:1999, 1999.
- 37. Y. Mairesse et al. *Science*, 302:1540, 2003.

## Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses

K. VARJÚ<sup>†||</sup>, Y. MAIRESSE<sup>‡</sup>, B. CARRÉ<sup>‡</sup>, M. B. GAARDE<sup>§</sup>,  
P. JOHNSON<sup>†</sup>, S. KAZAMIAS<sup>¶</sup>, R. LÓPEZ-MARTENS<sup>¶</sup>,  
J. MAURITSSON<sup>§</sup>, K. J. SCHAFER<sup>§</sup>, PH. BALCOU<sup>¶</sup>,  
A. L'HUILLIER<sup>†</sup> and P. SALIÈRES<sup>‡</sup>

<sup>†</sup>Department of Physics, Lund Institute of Technology,  
PO Box 118, SE-221 00 Lund, Sweden

<sup>‡</sup>CEA/DSM/DRECAM/SPAM, Bât. 522, Centre d'Etudes de Saclay,  
F-91191, Gif-sur-Yvette, France

<sup>§</sup>Department of Physics and Astronomy, Louisiana State University,  
Baton Rouge, Louisiana, USA

<sup>¶</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA,  
Palaiseau, France

(Received 20 July 2004)

**Abstract.** We study the phase of the atomic polarization in the process of high-order harmonic generation. Its dependence on the laser intensity and the harmonic order induce a frequency variation in time (chirp) respectively of the harmonic pulses and attosecond pulses. We review the recent experimental results on the temporal characterization of the harmonic emission and show that measurements performed using very different techniques (like XFROG and RABITT), probing the phase in different parameter spaces, can be connected through the mixed phase derivatives, demonstrating the common underlying physics.

### 1. Introduction

When an intense laser field interacts with a gas, high-order harmonics of the fundamental laser field can be emitted. This phenomenon, observed for the first time in 1987, in Saclay [1] (33th harmonic of a Nd-YAG laser) and in Chicago [2] (17th harmonic of a KrF laser), has been extensively studied during more than fifteen years [3]. The characteristic features of harmonic spectra are a decrease in efficiency for the first harmonics, followed by a broad plateau of nearly constant conversion efficiency, ending in an abrupt cut-off, which depends on the laser intensity and gas target and can reach very high energies, several hundreds of electron-volts [4–6]. The specifications of the harmonic emission, namely, ultra-short pulse duration, high brightness and good coherence, make it a unique source of XUV radiation, used in a growing number of applications ranging from atomic and molecular spectroscopy to solid-state and plasma physics [7].

<sup>||</sup> On leave from Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, Hungary.



Almost immediately after the first observation of the harmonic plateau, it was realized that, if the harmonics were emitted in phase, i.e. phase-locked, the temporal structure of the radiation emitted from the medium would consist of a ‘train’ of attosecond pulses separated by half the laser period [8, 9]. Whether or not the harmonics are emitted in phase has been an open question causing a lot of debate within the community, since no measurement techniques have been available until very recently. In 2001, phase-locking between five consecutive harmonics generated in argon was demonstrated [10]; their spectral selection would thus give in time a train of 250 as pulses. Almost simultaneously, isolated pulses with duration of 650 as were generated by spectrally filtering a few cut-off harmonics produced by an ultrashort (7 fs) laser pulse [11]. These experimental results marked the beginning of a new field of research: ‘attophysics’, where processes in atoms and molecules can be studied on an unprecedented time scale. A lot of effort is currently being devoted to developing different measurement techniques, allowing a detailed temporal characterization of these ultrashort pulses.

The purpose of this paper is to review some of the recent experimental results concerning the temporal characterization, and in particular the frequency variation in time (chirp) of both individual harmonic pulses and attosecond pulses. We use a unified perspective based on the strong field approximation (SFA) [12], illustrating the common underlying physics. The reader is referred to several review articles for a broader overview of this research topic [3, 13, 14]. We first discuss the phase of the atomic polarization and relate it to the physics of harmonic emission (section 2). The phase derivatives are then applied to the characterization of individual harmonics (section 3) and attosecond pulses (section 4). In section 5 we discuss the connection between the two aspects and conclude.

## 2. Phase of the atomic polarization

Many insights into the physical understanding of the interaction between atoms and strong laser fields have been provided by a simple semiclassical model [15, 16]. According to this model, the electron tunnels through the Coulomb energy barrier lowered by the relatively slowly varying linearly polarized electric field of the laser. Depending on the initial phase of the infrared field at the instant of ionization, the electron may return and recombine back to the ground state, leading to the emission of an extreme ultraviolet (XUV) photon whose energy is determined by the return kinetic energy. The periodicity of this process, twice per cycle, leads in the spectral domain to a series of peaks, at odd harmonic frequencies. For each harmonic, a number of different electron trajectories exist with the same electron return energy. These different classes of trajectories lead to completely different phase behaviours for the generated fields.

The strong field approximation (SFA) developed by Lewenstein and co-workers [12, 17–19] recovers the semiclassical picture presented above through a saddle-point analysis. In the spirit of Feynman’s path integrals, it allows us to write the dipole moment at the  $q$ th harmonic frequency,  $D_q$ , as a sum over all quantum paths (orbits) that contribute to this harmonic emission:

$$D_q = \sum_j A_j^q \exp \left[ i\Phi_j^q([r_j(t_i, t_r, \mathbf{p}))] \right]. \quad (1)$$

Each quantum orbit, labelled  $j$ , is characterized by an amplitude,  $A_j^q$ , representing its strength, and a phase,  $\Phi_j^q$  given by the action along the path  $r_j(t_i, t_r, \mathbf{p})$ :

$$\Phi_j^q([r_j(t_i, t_r, \mathbf{p})]) = q\omega t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left( \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2}{2} + I_p \right) dt, \quad (2)$$

where  $\omega$  and  $\mathbf{A}$  are the laser frequency and vector potential,  $I_p$  is the atom ionization potential,  $t_i$  and  $t_r$  are the electron ionization and recombination times and  $\mathbf{p}$  is the electron drift momentum. In principle, an infinite number of quantum orbits contribute to  $D_q$ . In the strong field regime, the sum can be reduced to a few closed quantum orbits for which the phase is stationary. These orbits are fully determined  $(t_i, t_r, \mathbf{p})$  for a given laser intensity. We do not consider here non-adiabatic effects happening for ultrashort driving laser pulses.

Figure 1 (a) and 2 (a) present the variation of the phase  $\Phi_j^q$  with the laser intensity ( $I$ ) and with the harmonic order  $q$ , for the two first (i.e. shortest) trajectories, that give the most important contributions to the sum in equation (2). The calculations are done by solving the saddle-point equations [18] in argon, identifying the trajectories and calculating the action along these

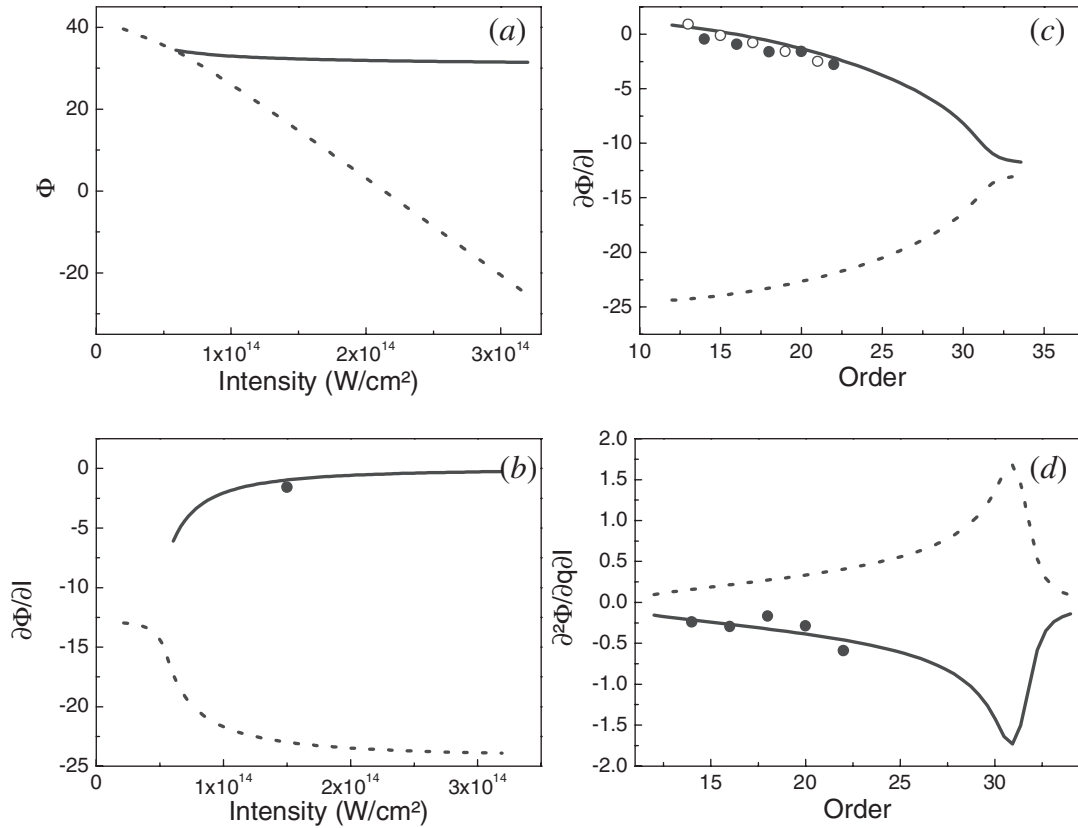


Figure 1. (a) Variation of the phase  $\Phi_j^q$  and (b) its derivative  $\partial\Phi_j^q/\partial I$  with the laser intensity  $I$  for the 19th harmonic in argon. (c) Variation of  $\partial\Phi_j^q/\partial I$  and (d)  $\partial^2\Phi_j^q/\partial q\partial I$  with  $q$  at  $1.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . The solid and dashed lines refer to the first (shortest) and second (next shortest) trajectories and are calculated using the strong field approximation. The solid circles are experimental data extracted from XFROG measurements and the open circles are simulations using dipole moments from the time-dependent Schrödinger equation [20] (see equation (6)). Measurements only give access to the average chirp between two harmonics and are thus plotted at even harmonic frequencies. The vertical axis unit in (b), (c) and (d) is  $10^{-14} \text{ W}^{-1} \text{ cm}^2$ .

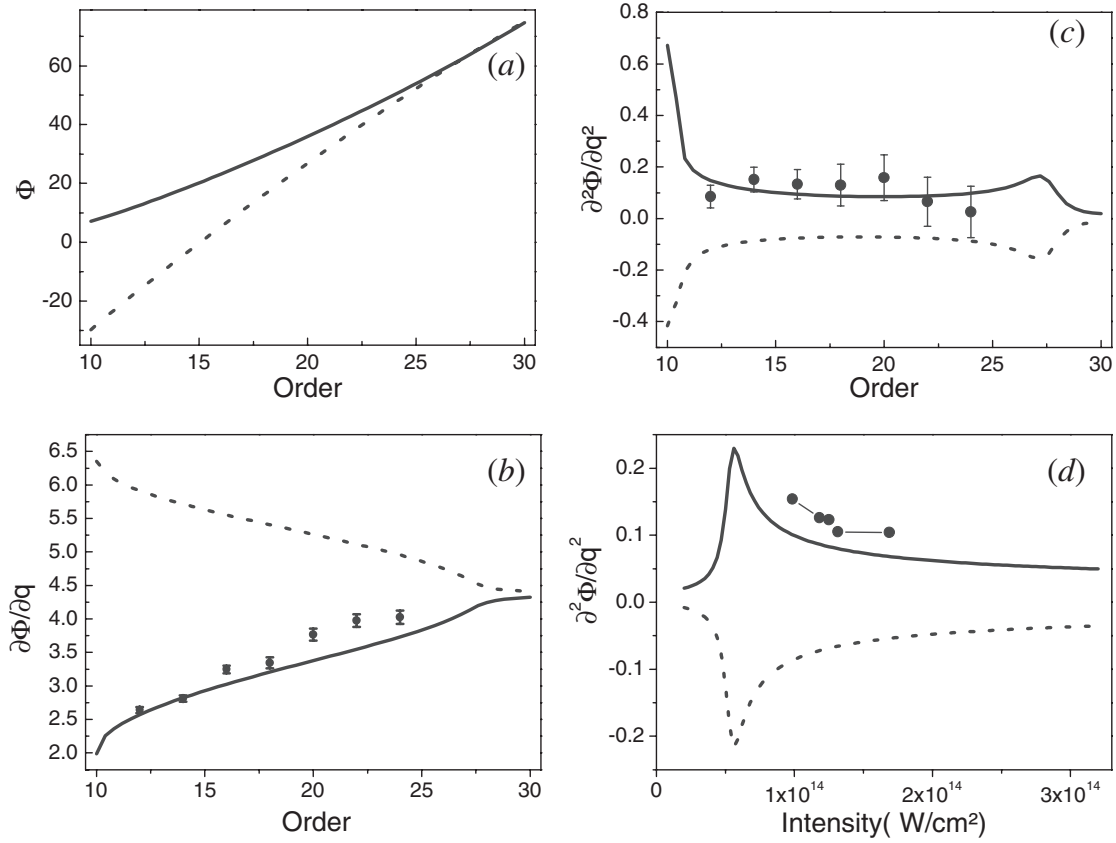


Figure 2. (a) Variation of the phase  $\Phi_j^q$  and (b) its derivative  $\partial\Phi_j^q/\partial q$  with harmonic order  $q$  at  $1.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  in argon. The solid and dashed lines refer throughout to the first (shortest) and second (next shortest) trajectories. (c) Variation of  $\partial^2\Phi_j^q/\partial q^2$  with  $q$  at  $1.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  and (d) with  $I$  at 29 eV (19th harmonic). The experimental points are extracted from RABITT measurements [21].

paths. At low intensity for a given harmonic, or at high harmonic order for a given intensity, the two trajectories (shown by a solid line for the shortest trajectory and by a dashed line for the next shortest) merge in a single trajectory characteristic of the cut-off region of the harmonic spectrum. In the next section, we will consider the intensity dependence of the phase at a given harmonic order and show that it results in a frequency chirp of the individual harmonic pulses. In section 4, we will study the order dependence of the phase at a fixed intensity, which induces a chirp of the attosecond pulses.

Before discussing in more detail the variation of the dipole phase and its influence on the temporal characteristics of the harmonic and attosecond pulses, we first briefly turn to the macroscopic aspect of harmonic generation [22, 23]. The phase of the harmonic field generated by the whole medium will have contributions both from the single atom response and from (time-dependent) macroscopic effects. In particular, rapid ionization of the medium introduces a temporal variation of the refractive index and consequently a frequency modulation of the emitted harmonic radiation. In the present paper, however, we discuss mostly effects due to the single atom response. This implies that the fundamental intensity is assumed to be sufficiently low to avoid the above-mentioned effects. Moreover, the way the phase of the atomic polarization is transmitted to the macroscopic field is determined by the way phase matching is achieved in the medium. To achieve phase matching, i.e. to ensure efficient conversion, the wave

vector difference (phase mismatch) between the harmonic wave and the polarization must be minimized, so that the phase difference varies as little as possible over the medium's length. Since the different quantum paths have different phase dependences, their contributions should be considered separately, before making a (coherent) sum. The phase difference to minimize depends therefore on the trajectory and is given by

$$\delta\phi_j^q = k_q z - qk_1 z + q \arctan(2z/b) - \Phi_j^q(I(r, z, t)). \quad (3)$$

In this equation, the first two terms characterize the difference in dispersion at the fundamental and  $q$ th harmonic frequencies, mainly due to the effect of the free electrons in the medium. The third one is a geometrical term originating from the Gouy phase shift across the focus of a Gaussian beam with confocal parameter  $b$ . The fourth term is the trajectory-dependent dipole phase described above. The axial variation of the laser intensity ( $I(z)$ ) leads to different phase matching conditions for the contributions from the different quantum paths. In other words, depending on the geometry, ionization and pressure conditions, phase matching can enhance one class of the contributing trajectories to the detriment of the others. In particular, by focusing the laser beam before the generating medium, phase matching results in efficient generation of only one of these contributions (the shortest) [24, 25]. Another simple way to select this contribution is by spatially aperturing the harmonic beam [26, 27], thus eliminating the more spatially divergent longer trajectory contributions. This trajectory selection is extremely important for the generation of attosecond pulse trains, as will be shown in section 4.

### 3. Frequency chirp of harmonic pulses

We here consider the generation of a particular harmonic order  $q$  by a short Fourier-transform-limited laser pulse with a Gaussian intensity distribution:

$$I(t) = I_0 \exp[-4 \ln(2)t^2/\tau_0^2]. \quad (4)$$

The intensity dependence of the phase has very interesting and important consequences. Except close to the cut-off region,  $\Phi_j^q$  varies almost linearly with intensity with a slope, denoted

$$-\alpha_j^q = \frac{\partial \Phi_j^q}{\partial I} \quad (\alpha_j^q > 0), \quad (5)$$

characteristic of the class of trajectory (see figure 1(b)). This dependence has been used to extract the relevant trajectories from general quantum-mechanical calculations. We show as an example in figure 3 the quantum path analysis for the 41st harmonic generated in neon calculated by solving the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) in argon in a single active electron approximation [28, 29]. The false colour indicates the strength of the  $\alpha$  coefficients as a function of laser intensity  $I$ . The approximately horizontal branches correspond to the different trajectories, the importance of which varies with intensity. The first trajectory is the most important one. The  $\alpha_j^q$  calculated using SFA are in general in very good agreement with those obtained from TDSE (compare figure 1(b) and figure 3 which present the same generic behaviour, despite the difference in generating gas and harmonic order). The strengths  $A_j^q$  of the different quantum path contributions may differ somewhat [29]. In this paper, we will mainly consider the contribution from the first trajectory.

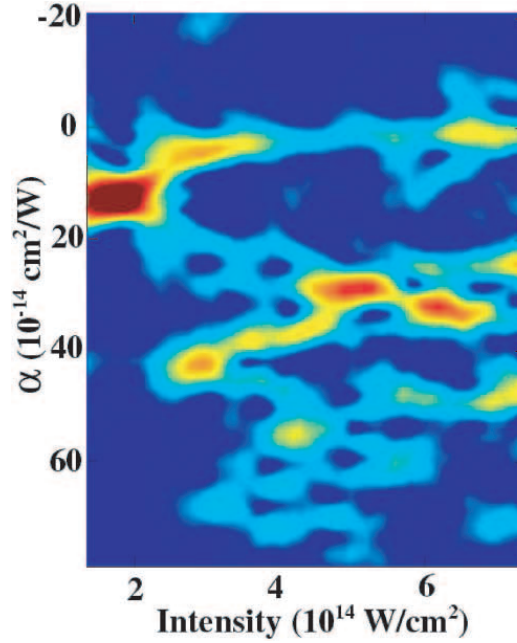


Figure 3. Quantum path analysis of the 41st harmonic in neon, calculated by integrating TDSE in the single active electron approximation [29]. The analysis, similar to time-frequency analysis for  $(\alpha, I)$  instead of  $(\omega, t)$  provides  $\alpha$  (ordinate) as a function of  $I$  (abscissa). Quantum paths can be identified by the approximately horizontal branches. The strengths of these paths are given by the false colours.

The fast intensity variation during the generating laser pulse induces a temporal modulation of the harmonic phase, characterized by its second time derivative (first time derivative of the instantaneous frequency, alias chirp rate).

$$b_j^q = -\frac{\partial^2 \Phi_j^q}{\partial t^2} = -\frac{\partial \Phi_j^q}{\partial I} \frac{\partial^2 I}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 \Phi_j^q}{\partial I^2} \left( \frac{\partial I}{\partial t} \right)^2 \approx 8 \ln(2) \frac{I_0}{\tau_0^2} \frac{\partial \Phi_j^q}{\partial I}, \quad (6)$$

at the top of the laser pulse and for a harmonic well inside the plateau region. This chirp is negative (since  $\partial \Phi_j^q / \partial I < 0$ ), meaning that the ‘blue’ (‘red’) frequencies are on the leading (falling) edge of the harmonic pulse. The magnitude of the chirp increases with  $\partial \Phi_j^q / \partial I$  and the laser peak intensity  $I_0$ . It is inversely proportional to the square of the fundamental pulse duration. The chirp is also  $q$ -dependent, reflecting the modification of the electron trajectories with different return energies (see figure 1 (c) and (d)).

These considerations can be generalized to non-transform-limited (chirped) fundamental pulses, with a phase  $\phi(t) = -\omega t - b_{\text{fund}} t^2 / 2$ ,  $\omega$  denoting the laser frequency. The chirp of the emitted harmonics then becomes

$$b_j^q = q b_{\text{fund}} + 8 \ln(2) \frac{I_0}{\tau_0^2} \frac{\partial \Phi_j^q}{\partial I}. \quad (7)$$

In some cases, it is easier to adopt a frequency representation of the light pulse, where its characteristics depend on the variation of its spectral phase  $\Phi(\Omega)$  with the frequency  $\Omega$ . More specifically, if we expand  $\Phi(\Omega)$  around the harmonic frequency  $\Omega_q$ ,

$$\Phi(\Omega) = \Phi(\Omega_q) + (\Omega - \Omega_q) \frac{\partial \Phi}{\partial \Omega} + \frac{1}{2} (\Omega - \Omega_q)^2 \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \Omega^2}, \quad (8)$$

the first-order term is associated to a shift of the pulse in time, whereas the second-order spectral phase is related to the frequency modulation in time (chirp) by

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial \Omega^2} = \frac{b_j^q}{(b_j^q)^2 + 16(\ln 2)^2 / (\Delta t)^4}, \quad (9)$$

where  $\Delta t$  is the harmonic pulse duration (FWHM). Note finally that the frequency chirp results in a broadening of the harmonic spectral width that is no longer determined by the Fourier-transform limit.

Since the first prediction of the existence of a harmonic chirp [22], a number of theoretical studies have been performed (see e.g. [3, 30–33]), but much less experimental work has been carried out due to the difficulty of measuring it. A first indication was given by the measurement of the spectral broadening of individual harmonics using diffraction optics, gratings [34, 35] or interferometric methods [36, 37]. Further evidence was given by simultaneous measurements of temporal and spectral widths [19] and by an asymmetric broadening depending on the sign of the laser chirp [38, 39]. Only recently, direct chirp measurements have become possible: the FROG (frequency resolved optical gating) technique first developed for visible and near infrared pulses has been extended to the XUV, using two-photon ionization [40, 41] and two-colour two-photon ionization (cross-correlation FROG or XFROG) [20, 42, 43]. In the latter technique, rare gas atoms are ionized by the XUV pulse in the presence of a short IR probe pulse. The photoelectron spectra consist of peaks corresponding to the harmonic energies and of ‘sidebands’ located in between, due to the simultaneous absorption of an XUV photon and absorption—or emission—of an IR photon. The sidebands provide the cross-correlation signal used to determine both the pulse duration of the harmonics [44, 45] and their frequency sweep during the pulse.

Figure 4 presents some of the measurements performed by Mauritsson *et al.* [20], for positively-chirped, transform-limited and negatively-chirped 815 nm laser pulses. The probe pulse was considerably shorter (12 fs) in duration, allowing us to have a good temporal resolution. The traces on the left and right represent the sideband signal as a function of time delay between the pump and the probe for different orders (left) and different chirps of the fundamental pulse (right). The energy of the photoelectrons clearly varies as a function of the time delay, characteristic of a frequency modulation of the harmonic pulses. The chirp rates vary as a function of order and depend on the fundamental temporal properties. They are plotted in the middle graph (figure 4) for three cases: (i) (black symbols) no fundamental chirp;  $I_{\text{fund}} = 1.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ;  $\tau_{\text{fund}} = 35 \text{ fs}$ ; (ii) (red symbols)  $b_{\text{fund}} = -0.8 \times 10^{27} \text{ s}^{-2}$ ,  $I_{\text{fund}} = 1.0 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ;  $\tau_{\text{fund}} = 90 \text{ fs}$ ; (iii) (blue symbols)  $b_{\text{fund}} = 1.2 \times 10^{27} \text{ s}^{-2}$ ,  $I_{\text{fund}} = 1.6 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ;  $\tau_{\text{fund}} = 60 \text{ fs}$ . The solid symbols are the experimental results for the sideband peaks (average between two harmonics). The open circles represent numerical results for the harmonics obtained by integration of the TDSE and of Maxwell’s equations in the experimental conditions.

These measured harmonic chirps allow us to determine the first derivatives of the phase with respect to intensity  $\partial \Phi_1^q / \partial I$  for the first trajectory, provided ionization can be neglected and provided the fundamental laser pulse is well characterized (see equation (7)). The experimental conditions included a hard aperture ensuring that only the shortest trajectory was selected. The coefficients



derived from the experimental and simulated data for the Fourier-transform-limited fundamental pulse are plotted in figure 1(b) and (c). The agreement between the SFA and TDSE simulations and the experimental data is excellent. Systematic measurements of the chirp of the harmonics thus provide information on how  $\partial\Phi_1^q/\partial I$  and even  $\partial^2\Phi_1^q/\partial I\partial q$  (see figure 1(d)) vary as a function of order. Its consequence on the attosecond structure of the harmonic emission will be discussed in section 5.

#### 4. Frequency chirp of attosecond pulses

We now consider the generation of the different harmonic orders *at a fixed laser intensity* (monochromatic laser field). In contrast to the previous section, the harmonics are now discrete (even though we represent the phase and its derivatives as continuous quantities). The electric field corresponding to the coherent sum of the  $N = q_i$  to  $q_f$  harmonic fields is given by

$$E(t) = \sum_{q=q_i, q_f} E_q(t) = \sum_{q=q_i, q_f} D_q \exp(-iq\omega t) = \sum_j \sum_{q=q_i, q_f} A_j^q \exp[-i(q\omega t - \Phi_j^q)]. \quad (10)$$

The temporal characteristics of this radiation are determined by the variation of the spectral phase  $\Phi(\Omega_q) = \Phi(q\omega) = \Phi_j^q$ , and thus will be different depending on the class  $j$  of trajectories considered. The first and second derivatives of  $\Phi_j^q$  with respect to  $q$  (used instead of  $\Omega_q$ ) are shown in figure 2(b) and (c) for the shortest (solid) and next shortest (dashed line) trajectory. The first derivative, which is a group delay, is equal to the real part of the recombination time  $t_r$  of the trajectory corresponding to the emission of the considered harmonic, also called emission time [21]:

$$t_{e,j}^q = \frac{1}{\omega} \frac{\partial \Phi_j^q}{\partial q}. \quad (11)$$

For each class of trajectory and in the plateau region, the first-order spectral phase  $\partial\Phi_j^q/\partial q$  varies approximately linearly with order (increasing for the first trajectory and decreasing for the second trajectory); this leads to approximately constant (positive and negative, resp.) second-order spectral phase  $\partial^2\Phi_j^q/\partial q^2$  (group delay dispersion). It is clear that if both classes of trajectories contribute to the harmonic emission, due to their very different emission times, the phase of the total harmonic field will vary considerably over the available bandwidth resulting in a very distorted temporal profile [24]. It is thus important to be able to select one class of trajectory through phase matching or spatial filtering (see section 2). Even if a single class is selected, the group delay dispersion in the plateau region prevent from reaching the shortest possible pulses sustained by the spectral width. Note that in the cut-off region, the second-order spectral phase becomes equal to zero.

The second-order spectral phase leads to a chirp of the attosecond pulses ( $b_{\text{atto}}$ , called atto chirp hereafter)

$$b_{\text{atto}} = \frac{\partial^2 \Phi_j^q / \partial q^2}{(\partial^2 \Phi_j^q / \partial q^2)^2 + 16(\ln 2)^2 / (\Delta\Omega)^4}, \quad (12)$$

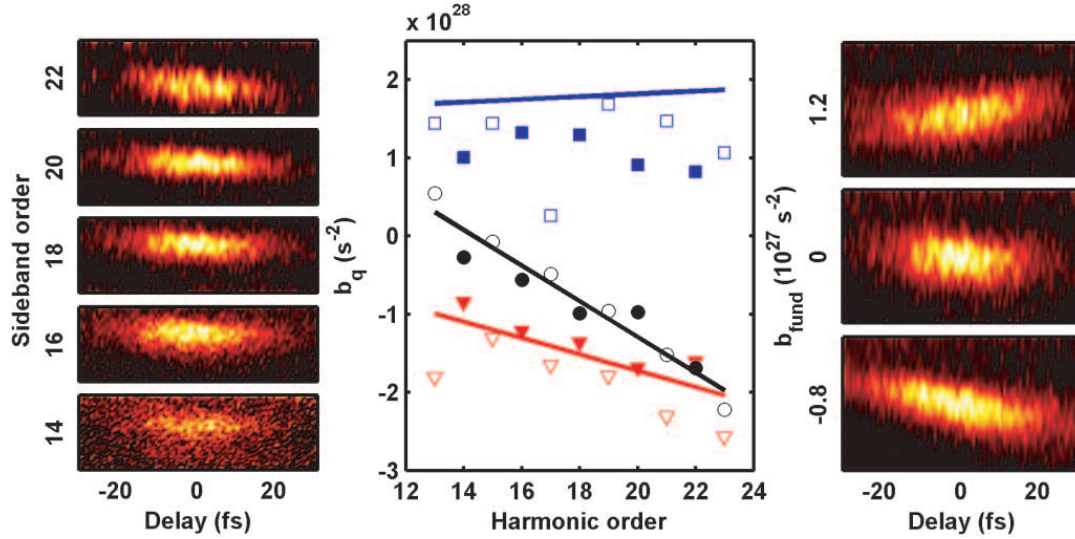


Figure 4. XFROG measurements [20]. The images on the right and left sides of the figure represent the photoelectron signal as a function of the delay between pump and probe and energy of the photoelectron (vertical). On the left, several sidebands with order 22, 20, 18, 16, 14 from the top to the bottom obtained for a Fourier-transform-limited laser pulse are shown. On the right, the sideband 18 is shown for three fundamental chirps:  $b_{\text{fund}} = 1.2, 0, -0.8 \times 10^{27} \text{ s}^{-2}$ . The graph in the middle shows the measured (filled symbols) and simulated (open symbols) chirp rates as a function of order in the three different fundamental chirp cases (see text). The black straight line is a fit to the simulated points; the blue and red lines are obtained from the latter by using equation (7).

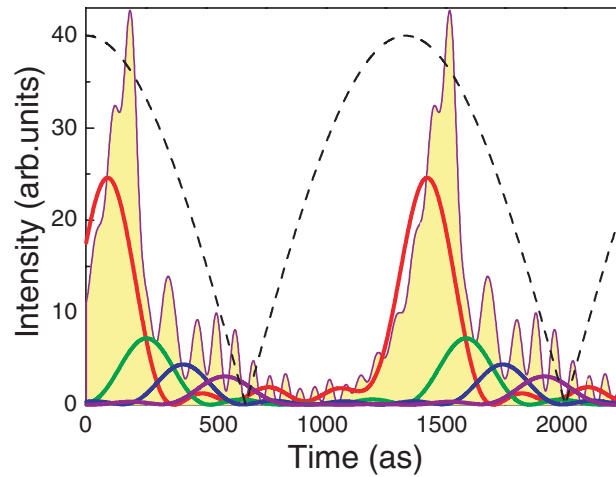


Figure 5. Attosecond pulse train corresponding to the superposition of groups of 5 consecutive harmonics generated in neon at  $3.8 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ : harmonics 25 to 33 (red), 35 to 43 (green), 45 to 53 (blue), 55 to 63 (purple). The train corresponding to the full available spectral width (25 to 69) is shown by the yellow-filled curve. Dots represent the absolute value of the laser electric field [21].

where  $\Delta\Omega$  is the selected spectral bandwidth. The attosecond pulses corresponding to the first trajectory are thus positively chirped (the low orders are emitted before the high orders), while those corresponding to the second trajectory exhibit a negative chirp.



Measurements of the relative phase between harmonics use a technique developed by Paul *et al.* [10] called RABITT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) [46]. Like XFROG (see section 3), RABITT is based on two-photon two-colour ionization of rare gases. The IR probe pulse does not need to be ultrashort but its delay relative to the XUV beam must be finely controlled on the time scale of the laser (fs) period. The key point of RABITT is that two multiphoton processes lead to the same final state in the continuum corresponding to a given sideband: absorption of harmonic  $q$  and one laser photon and absorption of harmonic  $q+2$  and emission of a laser photon. The interference between the amplitudes of these two processes leads to a modulation of the sideband amplitude as a function of the delay, the phase of which is directly connected to the difference of phase between the two consecutive harmonics [47]. The absolute timing of the attosecond pulse train relative to the generating IR field can also be retrieved from such experiments [48]. The first measurements reported a good phase locking (synchronization) between a few harmonics (11 to 19) generated in argon [10, 48, 49], because the deviations from a linear spectral phase, though measurable [50], are small for such a small bandwidth. A larger bandwidth both in argon and neon was investigated by Mairesse *et al.* [21], showing a significant positive second-order spectral phase for the harmonics in the plateau region, for the first (shortest) trajectory. We plot in figure 2(b), (c) and (d) the experimental results from [21]. The experimentally measured first- and second-order spectral phases nicely fit the SFA predictions in argon at an intensity of  $1.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  for the short trajectory class.

A clear illustration of the atto chirp is obtained by plotting the temporal profile of the superposition of different groups of harmonics (see equation (10)). This was performed by Mairesse *et al.* in neon, making use of the large spectral bandwidth of the harmonic emission [21]; the result is shown in figure 5. The linear variation of the harmonic emission time with order appears clearly. Its consequence is the very distorted temporal profile corresponding to the full available spectral bandwidth, with a duration of the main peaks three times larger than the Fourier limit. This temporal drift in the emission is a direct signature of the dynamics of the electrons participating in the generation process, and sets a limit on the minimum pulse duration that can be achieved by increasing the bandwidth without external phase control. In neon, this duration is 130 as corresponding to the superposition of eleven harmonic orders. In argon, the pulse duration corresponding to ten harmonics from the 15th to the 35th at an intensity of  $1.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  is almost 500 as [26] as shown in figure 6. The corresponding second-order spectral phase in this case is  $2.1 \times 10^{-32} \text{ s}^2$  and the chirp rate is  $3.7 \times 10^{31} \text{ s}^{-2}$ . This chirp, however, can be compensated by propagating the XUV pulse through a negatively dispersive medium [21, 26, 51]. This has been recently demonstrated by López-Martens *et al.* [26] using a 600 nm aluminium foil for the post-compression. The resulting pulse is almost Fourier-transform limited, with 170 as duration (see figure 6). In these experiments, the Al foil also acts as a bandpass filter, selecting a 30 eV bandwidth around 30 eV, so that a train of attosecond pulses is effectively produced and extracted from the full harmonic emission. Finally, recent measurements in the cut-off region confirm the absence of an atto chirp in this spectral region [26, 27, 52].

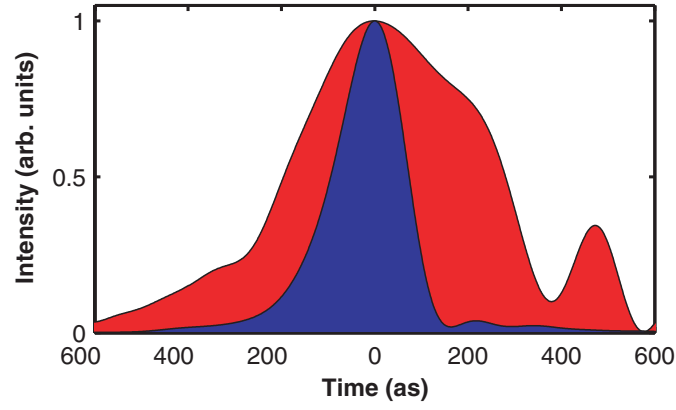


Figure 6. Post-compression of attosecond pulses generated in argon via amplitude and phase control using a 600 nm aluminium filter. The filter improves the synchronization of the harmonics resulting in a compression of the pulse duration from 480 as (curve filled in red) down to 170 as (curve filled in blue). This latter result is very close to the transform limit of 150 as and corresponds to only 1.2 cycles of the carrier frequency (30 eV) [26].

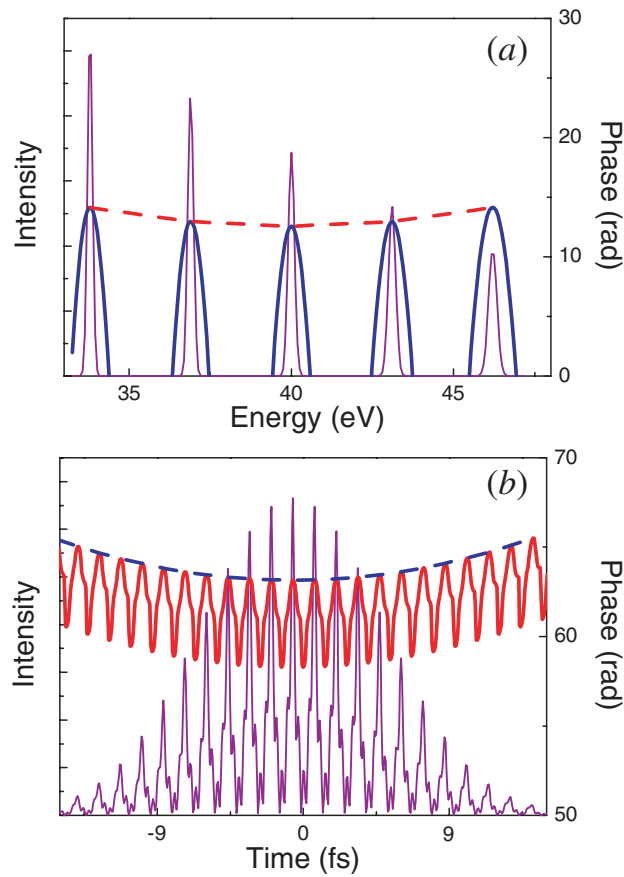


Figure 7. Illustration of the simultaneous presence of harmonic and atto chirps in the spectral and temporal domains. (a) Spectral intensity (purple, left scale) and phase (solid blue, right scale) for a group of 5 harmonics of slowly decreasing amplitudes. The dashed red line connects the phases at the central harmonic frequencies. (b) Corresponding temporal intensity (purple, left scale) and phase (solid red, right scale). The dashed blue line connects the phases corresponding to the peaks of the attosecond pulses.

## 5. Connection between harmonic chirp and atto chirp

The difference between the harmonic chirp and the atto chirp now appears clearly. The harmonic chirp is a direct consequence of the temporal variation of the driving laser intensity: it induces a change in time (from a cycle to the next) of the relevant electron trajectories in order to maintain the same return kinetic energy (and thus the emitted XUV photon energy). The harmonic phase, given by the action along these different electron trajectories, is thus temporally modulated. At constant laser intensity, there is no harmonic chirp. In contrast, the atto chirp exists even at fixed intensity. It is due to the fact that different harmonic orders correspond to different return kinetic energies and thus to different electron trajectories (and emission times) *within a laser cycle*. Of course, harmonics are generated by pulsed radiation and both chirps are always present. The time scale of the atto chirp is thus the laser cycle, whereas that of the harmonic chirp is the laser envelope [53]. This is illustrated in figure 7. In the spectral domain, the phase presents a quadratic behaviour around each harmonic frequency (solid blue line) that results in the temporal domain in a slow quadratic drift of the central phase (dashed blue line): this is the harmonic chirp. The small quadratic drift of the spectral phase from one harmonic to the next (shown by the dashed red line) induces a fast quadratic variation of the temporal phase around each attosecond pulse (solid red line): this is the atto chirp.

Although on a different time scale, the harmonic chirps, through their variation with order, influence the attosecond pulse structure. The mixed second partial derivatives  $\partial^2 \Phi_j^q / \partial I \partial q = \partial^2 \Phi_j^q / \partial q \partial I$  are non-equal to zero (see figure 1 (d)), implying that the emission times and thus the timing of the attosecond pulses changes in the train: there is a variable spacing of the bursts that are no more exactly spaced by a half laser cycle. For the short trajectory class,  $\partial \Phi_j^q / \partial q$  decreases with intensity. The spacing between the attosecond light bursts thus increases throughout the train, as illustrated in figure 8. This conclusion can be derived both from measurements of harmonic chirps (XFROG) or alternatively from measurements of atto chirps (RABITT) at different intensities [54] (see figure 9). The same generic behaviour is observed in both cases demonstrating the common physical origin. Unfortunately the different generating conditions do not allow us to compare directly the values. However, the convergence of these data is striking, considering the fact that they are obtained from completely different experiments (XFROG and RABITT), which were probing the atomic phase in two different parameter spaces (laser intensity and harmonic order).

In the case of figure 9 (a) (argon, Fourier-transform limited laser pulse), the variation of the period is measured to be  $\Delta T(t) = 1.5 \times 10^{-3} t$ , where  $t$  is counted for example from the peak of the pulse (in fs) [20]. It corresponds to about 60 as over the total pulse for an intensity of  $1.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  but can be much larger at higher intensity (two times larger in the case of figure 9 (b)). This variable spacing can be compensated by generating with a positively chirped laser pulse. This allows us to suppress the order dependence of the harmonic chirp as shown in figure 4, leading to regularly spaced attosecond pulses (see figure 8).

In figure 2 (d), we plot the variation of the second-order spectral phase as a function of the laser intensity. The symbols correspond to experimental data in argon from [21] which fit reasonably well with the prediction of the SFA. This implies that the chirp of the attosecond pulses varies significantly with intensity and thus, the duration of the attosecond pulses may change from pulse to pulse

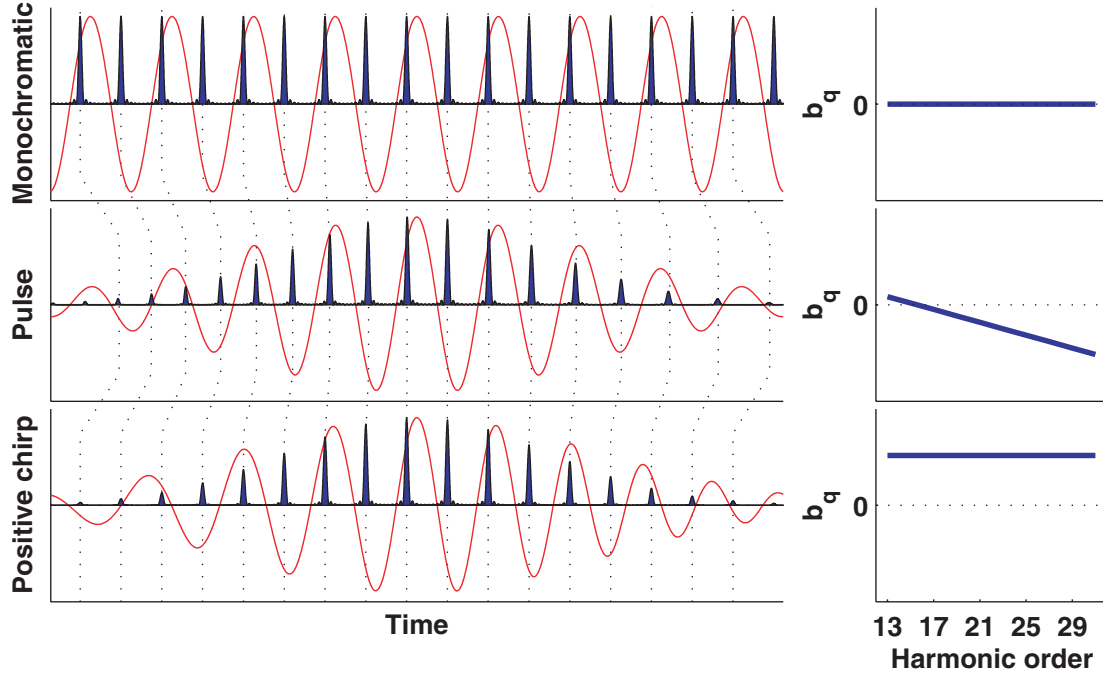


Figure 8. Illustration of the effect of the variation of the harmonic chirp rates with order (schematized on the right of the figure) on the spacing of the attosecond pulses in the train. (Top) Monochromatic light; no harmonic chirp; constant spacing between the attosecond pulses. (Middle) Fourier-transform-limited fundamental pulse; negative harmonic chirp decreasing with order; spacing increasing during the pulse. (Bottom) Positively chirped fundamental pulse; positive harmonic chirps independent of order; constant spacing.

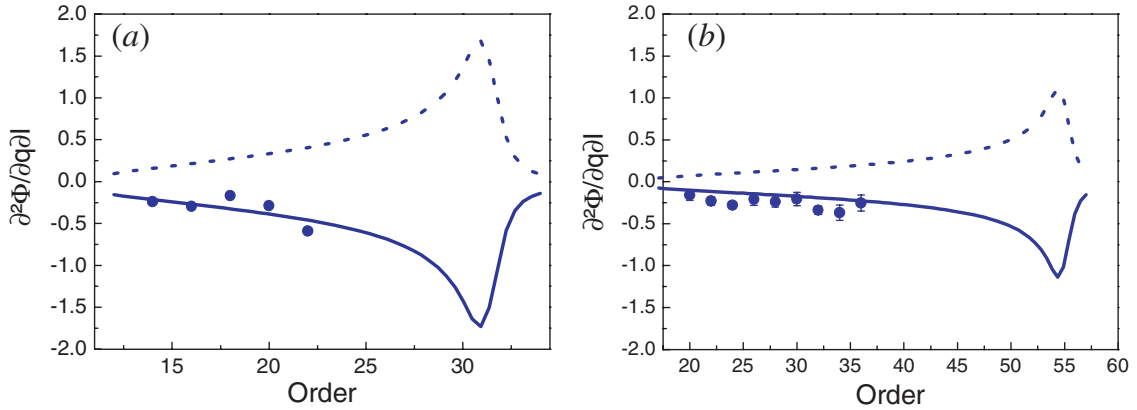


Figure 9. Convergence of the measurements performed with XFROG and RABITT. (a) Recall of figure 1(d) obtained in argon with XFROG. (b) Measurements performed in neon at  $3 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  with RABITT [54] and corresponding SFA simulations. The vertical axis unit in (a) and (b) is  $10^{-14} \text{ W}^{-1} \text{ cm}^2$ .

during the train. Note also that the amplitudes of the contributing harmonics vary with intensity (especially when they enter the cut-off region), which also affects the attosecond pulse duration within the train. The variation of the chirp is characterized by the third-order derivative  $\partial^3 \Phi_j^q / \partial I \partial^2 q = \partial^3 \Phi_j^q / \partial^2 q \partial I$  which can also in principle be extracted from a high accuracy XFROG measurement of the variation of the chirp as a function of order (second derivative) [54].

In conclusion, we have explored in detail the first- and second-order variations of the atomic phase as a function of the laser intensity and harmonic order. This

unravels the similitudes and differences existing between the chirp of individual harmonic pulses and the chirp of the attosecond pulses. We have shown that the two techniques XFROG and RABITT used to characterize the two chirps (respectively) converge to give the same information, namely the values of the mixed partial derivatives of the atomic phase. This underlines the common physical origin of all these phenomena and provides a unified frame for their description and understanding.

### Acknowledgments

We acknowledge the support of the European Community's Human Potential Programme under contracts MRTN-CT-2003-505138 (XTRA) and HPRI-CT-2002-00191 (SLIC), the National Science Foundation through grant No. PHY-933890 and the Swedish Science Council.

### References

- [1] FERRAY, M., L'HUILLIER, A., LI, X. F., LOMPRÉ, L. A., MAINFRAY, G., and MANUS, C., 1988, *J. Phys. B*, **21**, L31.
- [2] MCPHERSON, A., GIBSON, G., JARA, H., JOHANN, U., LUK, T. S., MCINTYRE, I., BOYER, K., and RHODES, C. K., 1987, *J. opt. Soc. Am. B*, **4**, 595.
- [3] SALIÈRES, P., L'HUILLIER, A., ANTOINE, PH., and LEWENSTEIN, M., 1999, *Adv. at. molec. opt. Phys.*, **41**, 83; SALIÈRES, P., and LEWENSTEIN, M., 2001, *Meas. Sci. Technol.*, **12**, 1818.
- [4] CHANG, Z., RUNDQUIST, A., WANG, H., MURNANE, M. M., and KAPTEYN, H. C., 1997, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 2967.
- [5] SPIELMANN, C., BURNETT, N., SARTANIA, S., KOPPITSCH, R., SCHNÜRER, M., KAN, C., LENZNER, M., WOBRAUSCHEK, P., and KRAUSZ, F., 1997, *Science*, **278**, 661.
- [6] SERES, E., SERES, J., KRAUSZ, F., and SPIELMANN, C., 2004, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 163002.
- [7] L'HUILLIER, A., JOHANSSON, A., NORIN, J., MAURITSSON, J., and WAHLSTRÖM, C. G., 2003, *Eur. Phys. J. D*, **26**, 91.
- [8] FARKAS, G., and TOTH, C., 1992, *Phys. Lett. A*, **168**, 447.
- [9] HARRIS, S. E., MACKLIN, J. J., and HÄNSCH, T. W., 1993, *Opt. Commun.*, **100**, 487.
- [10] PAUL, P. M., TOMA, E. S., BREGER, P., MULLOT, G., AUGÉ, F., BALCOU, PH., MULLER, H. G., and AGOSTINI, P., 2001, *Science*, **292**, 1689.
- [11] HENTSCHEL, M., KIENBERGER, R., SPIELMANN, C., REIDER, G. A., MILOSEVIC, N., BRABEC, T., CORKUM, P. B., HEINZMANN, U., DRESCHER, M., and KRAUSZ, F., 2001, *Nature*, **414**, 509.
- [12] LEWENSTEIN, M., BALCOU, PH., IVANOV, M. YU., L'HUILLIER, A., and CORKUM, P., 1994, *Phys. Rev. A*, **49**, 2117.
- [13] BRABEC, T., and KRAUSZ, F., 2000, *Rev. mod. Phys.*, **72**, 545.
- [14] AGOSTINI, P., and DIMAURO, L. F., 2004, *Rep. Prog. Phys.*, **67**, 813.
- [15] CORKUM, P. B., 1993, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994.
- [16] SCHAFER, K. J., YANG, B., DIMAURO, L. F., and KULANDER, K. C., 1993, *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 1599.
- [17] BECKER, W., LOHR, A., and KLEBER, M., 1994, *J. Phys. B*, **27**, L325; corrigendum, 1995, *ibid.*, **28**, 1931.
- [18] LEWENSTEIN, M., SALIÈRES, P., and L'HUILLIER, A., 1995, *Phys. Rev. A*, **52**, 4747.
- [19] SALIÈRES, P., CARRÉ, B., LE DÉROFF, L., GRASBON, F., PAULUS, G. G., WALTHER, H., KOPOLD, R., BECKER, W., MILOSEVIĆ, D. B., SANPERA, A., and LEWENSTEIN, M., 2001, *Science*, **292**, 902.

- [20] MAURITSSON, J., JOHNSSON, P., LÓPEZ-MARTENS, R., VARJÚ, K., L'HUILLIER, A., KORNELIS, W., BIEGERT, J., KELLER, U., GARDE, M. B., and SCHAFER, K. J., 2004, *Phys. Rev. A*, **70**, 021801.
- [21] MAIRESSE, Y., DE BOHAN, A., FRASINSKI, L. J., MERDJI, H., DINU, L. C., MONCHICOURT, P., BRÉGER, P., KOVACEV, M., TAÏEB, R., CARRÉ, B., MULLER, H. G., AGOSTINI, P., and SALIÈRES, P., 2003, *Science*, **302**, 1540.
- [22] SALIÈRES, P., L'HUILLIER, A., and LEWENSTEIN, M., 1995, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3776.
- [23] ANTOINE, PH., L'HUILLIER, A., LEWENSTEIN, M., SALIÈRES, P., and CARRÉ, B., 1996, *Phys. Rev. A*, **53**, 1725.
- [24] ANTOINE, PH., L'HUILLIER, A., and LEWENSTEIN, M., 1996, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 1234.
- [25] GAARDE, M. B., and SCHAFER, K. J., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 213901.
- [26] LÓPEZ-MARTENS, R., VARJÚ, K., JOHNSSON, P., MAURITSSON, MAIRESSE, Y., SALIÈRES, P., GAARDE, M. B., SCHAFER, K. J., PERSSON, A., SVANBERG, S., WAHLSTRÖM, C.-G., and L'HUILLIER, A., 2004, submitted.
- [27] MAIRESSE, Y., DE BOHAN, A., FRASINSKI, L. J., MERDJI, H., DINU, L. C., MONCHICOURT, P., BRÉGER, P., KOVACEV, M., AUGUSTE, T., CARRÉ, B., MULLER, H. G., AGOSTINI, P., and SALIÈRES, P., 2004, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 163901.
- [28] BALCOU, PH., DEDERICHS, A. S., GAARDE, M. B., and L'HUILLIER, A., 1999, *Phys. Rev. B*, **32**, 2973.
- [29] GAARDE, M. B., and SCHAFER, K. J., 2002, *Phys. Rev. A*, **65**, 031406(R).
- [30] KAN, C., CAPJACK, C. E., RANKIN, R., and BURNETT, N. H., 1995, *Phys. Rev. A*, **52**, R4336.
- [31] SCHAFER, K. J., and KULANDER, K. C., 1997, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 638.
- [32] GAARDE, M. B., 2001, *Opt. Express*, **8**, 529.
- [33] KIM, C. H., LEE, D. G., SHIN, H. J., and NAM, C. H., 2001, *Phys. Rev. A*, **63**, 063403.
- [34] NUGENT-GLANDORF, L., SCHEER, M., KRISHNAMURTHY, M., ODOM, J. W., and LEONE, S. R., 2000, *Phys. Rev. A*, **62**, 023812.
- [35] VILLORESI, P., CECCHERINI, P., POLETO, L., TONDELLO, G., ALTUCCI, C., BRUZZESE, R., DE LISIO, C., NISOLI, M., STAGIRA, S., CERULLO, G., DE SILVESTRI, S., and SVELTO, O., 2000, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 2494.
- [36] BELLINI, M., LYGÅ, C., TOZZI, A., GAARDE, M. B., DELFIN, C., HÄNSCH, T. W., L'HUILLIER, A., and WAHLSTRÖM, C. G., 1998, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 297.
- [37] LYGÅ, C., GAARDE, M. B., DELFIN, C., BELLINI, M., HÄNSCH, T. W., L'HUILLIER, A., and WAHLSTRÖM, C. G., 1999, *Phys. Rev. A*, **60**, 4823.
- [38] CHANG, Z., RUNDQUIST, A., WANG, H., CHRISTOV, I., KAPTEYN, H. C., and MURNANE, M. M., 1998, *Phys. Rev. A*, **58**, R30.
- [39] SALIÈRES, P., ANTOINE, PH., DE BOHAN, A., and LEWENSTEIN, M., 1998, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 5544.
- [40] KOBAYASHI, Y., SEKIKAWA, T., NABEKAWA, Y., and WATANABE, S., 1998, *Optics Lett.*, **23**, 64.
- [41] SEKIKAWA, T., OHNA, T., YAMAZAKI, T., NABEKAWA, Y., and WATANABE, S., 1999, *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 2564.
- [42] NORIN, J., MAURITSSON, J., JOHANSSON, A., RAARUP, M. K., BUIL, S., PERSSON, A., DÜHR, O., GAARDE, M. B., SCHAFER, K. J., KELLER, U., WAHLSTRÖM, C. G., and L'HUILLIER, A., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 193901.
- [43] SEKIKAWA, T., KATSURA, T., MIURA, S., and WATANABE, S., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 193902.
- [44] GLOVER, T. E., SCHOENLEIN, R. W., CHIN, A. H., and SHANK, C. V., 1996, *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 2468.
- [45] SCHINS, J. M., BREGER, P., AGOSTINI, P., CONSTANTINESCU, R. C., MULLER, H. G., BOUHAL, A., GRILLON, G., ANTONETTI, A., and MYSYROWICZ, A., 1996, *J. opt. Soc. Am. B*, **13**, 197.
- [46] MULLER, H. G., 2002, *Appl. Phys. B*, **74**, S17.
- [47] VÉNIARD, V., TAIEB, R., and MAQUET, A., 1996, *Phys. Rev. A*, **54**, 721.



- [48] DINU, L. C., MULLER, H. G., KAZAMIAS, S., MULLOT, G., AUGÉ, F., BALCOU, PH., PAUL, P. M., KOVACEV, M., BRÉGER, P., and AGOSTINI, P., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 063901.
- [49] ASEYEV, S. A., NI, Y., FRASINSKI, L. J., MULLER, H. G., and VRAKING, M. J. J., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 223902.
- [50] KAZAMIAS, S., and BALCOU, PH., 2004, *Phys. Rev. A*, **69**, 063416.
- [51] KIM, K. T., KIM, C. M., BAIK, M., UMESH, G., and NAM, C. H., 2004, *Phys. Rev. A*, **69**, 051805(R).
- [52] KIENBERGER, R., GOULIELMAKIS, E., UIBERACKER, M., BALTUSKA, A., YAKOVLEV, V., BAMMER, F., SCRINZI, A., WESTERWALBESLOH, TH., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., DRESCHER, M., and KRAUSZ, F., 2004, *Nature*, **427**, 817.
- [53] LÓPEZ-MARTENS, R., MAURITSSON, J., JOHNSSON, P., VARJÚ, K., L'HUILLIER, A., KORNELIS, W., BIEGERT J., KELLER, U., GAARDE, M. B., and SCHAFER, K. J., 2004, *Appl. Phys. B*, **78**, 835.
- [54] MAIRESSE, Y., VARJÚ, K., AGOSTINI, P., BRÉGER, P., CARRÉ, B., DINU, L. C., FRASINSKI, L. J., JOHNSSON, P., MERDJI, H., MONCHICOURT, P., MULLER, H. G., L'HUILLIER, A., and SALIÈRES, P., 2004, to be published.

**Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields**

P. Johnsson,<sup>1</sup> R. López-Martens,<sup>2</sup> S. Kazamias,<sup>3</sup> J. Mauritsson,<sup>4</sup> C. Valentin,<sup>2</sup> T. Remetter,<sup>1</sup> K. Varjú,<sup>1,\*</sup> M. B. Gaarde,<sup>4</sup> Y. Mairesse,<sup>5</sup> H. Wabnitz,<sup>5</sup> P. Salieres,<sup>5</sup> Ph. Balcou,<sup>2</sup> K. J. Schafer,<sup>4</sup> and A. L'Huillier<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Department of Physics, Lund Institute of Technology, P.O. Box 118, SE-221 00 Lund, Sweden*

<sup>2</sup>*Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole Nationale Supérieure des Techniques Avancées (ENSTA) - Ecole Polytechnique CNRS UMR 7639, 91761 Palaiseau Cedex, France*

<sup>3</sup>*Laboratoire d'Interaction du rayonnement X Avec la Matière, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France*

<sup>4</sup>*Department of Physics and Astronomy, Louisiana State University, Baton Rouge, Louisiana 70803-4001, USA*

<sup>5</sup>*CEA/DSM/DRECAM/SPAM, Bât. 522, Centre d'Etudes de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

(Received 14 December 2004; published 29 June 2005)

We use a train of sub-200 attosecond extreme ultraviolet (XUV) pulses with energies just above the ionization threshold in argon to create a train of temporally localized electron wave packets. We study the energy transfer from a strong infrared (IR) laser field to the ionized electrons as a function of the delay between the XUV and IR fields. When the wave packets are born at the zero crossings of the IR field, a significant amount of energy ( $\sim 20$  eV) is transferred from the field to the electrons. This results in dramatically enhanced above-threshold ionization in conditions where the IR field alone does not induce any significant ionization. Because both the energy and duration of the wave packets can be varied independently of the IR laser, they are valuable tools for studying and controlling strong-field processes.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.013001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.013001)

PACS numbers: 32.80.Rm, 32.80.Qk, 42.65.Ky

Attosecond pulses constitute a novel tool for probing processes taking place on the time scale of electron motion inside atoms. They have been produced in the extreme ultraviolet (XUV) region both as attosecond pulse trains (APTs) [1–5] and as single attosecond pulses [6–10] via high harmonic generation [11]. APTs, synthesized from several phase-locked harmonics, promise to be particularly flexible attosecond sources since the amplitude and relative phase of the spectral components (the harmonics) can be tailored to vary the duration and the time-frequency characteristics of the pulses [5,12]. Exploiting this flexibility offers a new route to controlling strong-field interactions in atoms and molecules.

Strong-field processes are initiated by the creation of temporally confined electron wave packets (EWPs) which subsequently gain energy from a strong infrared (IR) field. The interaction of these wave packets with their parent ion gives rise to processes such as nonsequential double ionization, high-order harmonic generation, and above-threshold ionization (ATI) [11,13–15], and has recently been exploited in molecular clock experiments [16–19]. In the most common scenario, the same intense IR field also drives the EWP creation via tunneling through the suppressed Coulomb barrier. These tunneling EWPs are formed periodically near the peak of the electric field cycle, and their properties are determined almost solely by the IR intensity. EWPs produced by APTs, on the other hand, directly inherit their properties through the single-photon ionization step. Thus, the energy, timing, and coherence of the EWPs can be varied independently of the process under investigation by controlling the properties of the APT. This opens up a new range of experiments, where APTs can be used as a controllable injection mechanism for EWPs in strong-field experiments [20].

In this Letter, we use well characterized APTs, with central energy  $\hbar\omega_{\text{XUV}} \approx 30$  eV, to generate EWPs near the ionization threshold in argon, and we study the subsequent dynamics of these wave packets in a strong IR field. The major obstacle to performing this type of experiment was recently overcome with the generation of true on-target APTs [5]. We show that the exchange of energy between the EWP and an intense optical field, a crucial step in all strong-field processes, is greatly affected both by changing the timing of the attosecond pulses and by altering their coherence properties (frequency chirp). Since the EWPs are injected close to the ionization threshold, the presence of the atomic potential also manifests itself during the energy exchange with the IR field. This is in contrast with previous attosecond experiments using EWPs with high energies where effects due to the ion core are negligible [7,8]. The use of APTs to control both the timing of the EWP creation and its subsequent energy exchange with the IR field represents the first application of APTs.

When a temporally confined EWP is injected into the continuum in the presence of an IR field, the generated photoelectrons will be redistributed in energy depending on the IR intensity and the initial properties of the EWP, as well as on the timing of the injection with respect to the IR cycle. For an EWP injected with a high initial momentum, the presence of the Coulomb potential can be neglected and the cross section for absorption or emission of IR photons can be assumed to be constant over the energy range. In this case, the final momentum of an electron injected at time  $t_i$ , with an initial momentum in the direction of the IR field polarization, will be simply given by  $p_f(t_i) = p(t_i) - eA(t_i)$ , where  $p(t_i)$  is the initial momentum of the EWP,  $e$  is the electron charge, and  $A(t_i)$  the vector potential of the IR



field at the time of injection [21]. If an APT synthesized from high-order harmonics is used for the injection, EWPs are generated periodically with a separation of half a laser cycle, leading to the appearance of peaks spaced by  $2\hbar\omega$  in the photoelectron spectrum. In the presence of an IR field, two consecutive EWPs will be shifted in momentum in opposite directions since  $A(t_i) = -A(t_i + \frac{\pi}{\omega})$ , giving two contributions, with different energy, to the final photoelectron distribution. In the time domain, the periodicity of the process becomes equal to the full laser cycle, and peaks spaced by  $\hbar\omega$  appear in the photoelectron spectrum. At low IR intensities these are seen as sidebands in between the harmonic peaks, the intensities of which vary with delay [1]. For high IR intensities, electrons with energies well outside the original one-photon electron spectrum will be produced at certain delays. In our case, the APTs are synthesized from plateau harmonics and the EWPs are injected with low initial momentum, so that the effect of the Coulomb potential cannot be neglected. This will lead to an asymmetry between the low and high energy parts of the spectrum.

In order to illustrate the effect of a strong IR field and that of the Coulomb potential we have calculated the photoelectron spectra by integrating the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) in three dimensions for an argon atom in the presence of a strong 800 nm IR field and an APT [22], including electrons emitted within a  $2\pi$  solid angle. The IR intensity ( $3 \times 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) and the time structure of the APT are the same as in the experiment. At these IR intensities the ionization is dominated by the APT. The results are presented in Figs. 1(a) and 1(b), together with illustrations of the relationship between the fields, and in Fig. 1(c) the total photoelectron spectrum is shown as a function of the delay  $\tau$  between the two fields. Throughout this Letter, the phase delay  $\omega\tau$  is given relative to a sine wave. When the pulses in the APT coincide with the peaks of the IR field [ $\omega\tau = (n + 1/2)\pi$ , Fig. 1(a)], the vector potential is zero and so the average momentum change of the wave packet is as well. When the pulses instead coincide with the zero crossings of the IR field [ $\omega\tau = n\pi$ , Fig. 1(b)], the magnitude of the vector potential, and thus the momentum change, is maximum [7,8,21], and the electron energy distribution is much broader. The reason why we see a broadening, and not just a shift, is that the contributions from two consecutive EWPs are shifted in opposite directions in energy as discussed above. However, the probability of emitting IR photons is significantly decreased, compared to the probability of absorbing IR photons, when the final state approaches the ionization threshold [23]. This leads to a “pileup” of electrons at low energies, whereas the high energy side can expand freely.

Because of the finite duration of the EWP, different parts of the wave packet are born at different instants of the IR field, and thus experience a different momentum change. If the injected EWP is transform limited (i.e., the central

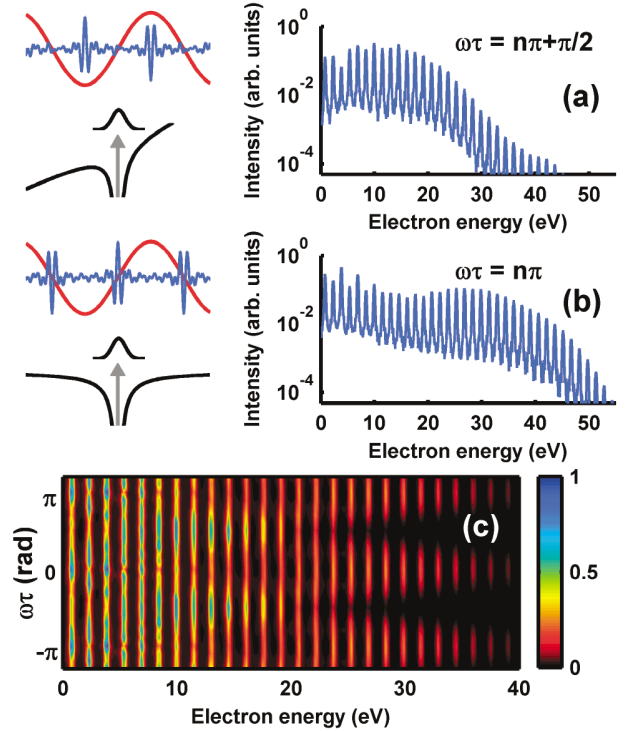


FIG. 1 (color). Controlling ATI using an attosecond pulse train. On the left side the timing between the two fields, together with the shape of the atomic potential at the moment when the wave packet is released into the continuum, are depicted. On the right side photoelectron spectra calculated by solving the TDSE for the two cases (a) and (b) are presented on a logarithmic scale. In (c) the calculated photoelectron spectrum as a function of the delay is shown on a linear scale.

frequency of the APT is constant),  $p(t_i)$  is constant over the pulse duration, leading to a broadening of the photoelectron spectral envelope for all delays. If instead the EWP is initially chirped (i.e., has an energy variation over its temporal duration),  $p(t_i)$  will vary over the pulse duration and the energy distribution will be either further broadened, if the derivatives of  $p(t_i)$  and  $A(t_i)$  have the same sign, or narrowed, if the sign is opposite [8,24]. The influence on the electron energy distribution will be further discussed in the experimental section.

Our experimental method for generating, characterizing, and manipulating APTs has been described in detail elsewhere [5,25]. Briefly, the APT is synthesized from harmonics 13 through 35 generated in argon from an 800 nm, 35 fs Ti:sapphire laser pulse. The harmonics are filtered using a hard aperture and aluminum foils. The aperture is used to remove the contribution from the long quantum path to the harmonic emission, while the aluminum filters remove the remaining IR and the intense low-order harmonics. These filters also serve to compress the attosecond pulses using the negative group-delay dispersion of aluminum to compensate for the intrinsic positive chirp of the attosecond pulses [2]. The APT is overlapped both spa-

tially and temporally with the dressing field (a delayed replica of the IR pulse used for harmonic generation). The two beams copropagate collinearly and are then focused with the same focusing mirror into a detection gas (argon) inside a magnetic bottle electron time-of-flight spectrometer (MBES). The MBES collects electrons emitted within a  $2\pi$  solid angle around a direction parallel to the polarization of the IR and XUV fields. The static pressure of the detection gas is  $\sim 1 \times 10^{-4}$  mbar and care is taken to avoid space-charge effects during the experiment. By applying different retarding potentials to the flight tube of the MBES, we resolve different energy regions in the photoelectron spectrum. We can characterize the EWP at the time of injection by using a weak IR intensity, such that only first order sidebands are produced. The spectral interference in these sidebands, along with the photoelectron peak amplitudes, can be used to reconstruct the average time structure of the EWP at the time of injection [1,26]. This technique is often referred to as RABITT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) [26]. In addition, the maxima of the sideband oscillations appear when the EWPs are created at the peaks of the IR field, allowing us to unambiguously determine the absolute delay between the EWP and the dressing IR field. Furthermore, by correcting for the single-photon ionization cross section, the harmonic amplitudes can be determined from the measured photoelectron peak amplitudes. Finally, by repeating the measurement for different detection gases so that all harmonics on target are included, the average shape of the on-target attosecond XUV pulses can be reconstructed.

The current experiment was performed using two attosecond pulse durations. Using a 600 nm thick aluminum filter (Fig. 2), the intrinsic positive chirp of the attosecond pulses is almost completely compensated for [5], yielding an average of 160 as per pulse in the APT and 180 as per wave packet in the EWP train at the time of their injection. The EWPs are longer than the XUV pulses due to the reduction in bandwidth imposed by the ionization cross section of argon. The effect of a frequency modulation on the EWPs was investigated by using a 200 nm aluminum filter (Fig. 3). With this filter thickness, both the attosecond XUV pulses and the EWPs exhibit a positive chirp. Here, the average duration of each pulse in the APT is 340 as, whereas that of the EWPs is shortened to 260 as due to spectral filtering caused by the ionization process.

Figure 2(a) presents experimental photoelectron spectra for different conditions: only the IR field (blue line), only the APT (black line), both beams with  $\omega\tau = n\pi$  (red line), and  $\omega\tau = (n + \frac{1}{2})\pi$  (green line). The IR intensity ( $I_{\text{IR}} \approx 3 \times 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) is not strong enough to induce any significant ATI (a few low-order peaks are visible) and the ionization is mainly dominated by the APT when present. The short duration of the attosecond pulses allows us to control the instant of ionization relative to the IR field and,

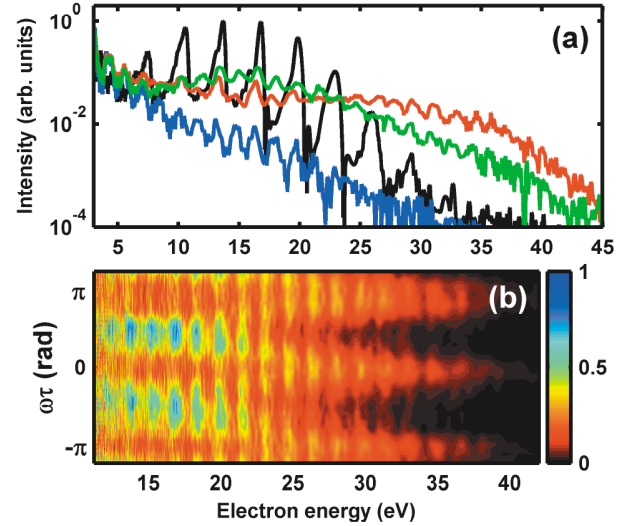


FIG. 2 (color). Experimental results. (a) Photoelectron spectra (logarithmic scale) obtained by concatenation of measurements for different retarding potentials, in different conditions: with the IR field alone at an intensity equal to  $3 \times 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$  (blue line), with a train of 160 as pulses alone (black line), with both fields overlapped at  $\omega\tau = n\pi$  (red line), and  $\omega\tau = (n + \frac{1}{2})\pi$  (green line). (b) Photoelectron spectra as a function of time delay between the XUV pulses and the IR field (linear scale), taken with a retarding potential of 9.3 V.

in particular, to choose time intervals not accessible through tunneling ionization (i.e.,  $\omega\tau = n\pi$ ). A detailed experimental study is presented in Fig. 2(b), which shows how the photoelectron signal varies as a function of energy and time delay over slightly more than one cycle of the IR light (1 cycle corresponds to 2.6 fs). The periodic displacement of the energy distribution towards higher energies as  $\tau$  is varied is quite noticeable, directly reflecting the effect of creating a temporally localized EWP at the zero crossings of an intense IR field.

In a semiclassical model [9,21], which neglects the ionization potential, the maximum final energy of an electron in an IR dressing field is given by  $W_f = W_{\text{EWP}} + 2U_p + \sqrt{8W_{\text{EWP}}U_p}$ , where  $W_{\text{EWP}}$  is the initial energy of the electron and  $U_p$  is the ponderomotive energy. In our

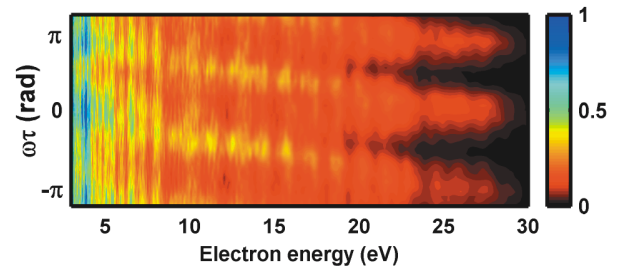


FIG. 3 (color). Photoelectron spectra as a function of time delay between the XUV pulses and the IR field, recorded with chirped 340 as pulses and no retarding potential.

case,  $W_{\text{EWP}} \approx 15$  eV and  $U_p \approx 2$  eV such that  $W_f \approx 35$  eV. Comparing this with the cutoff law for ATI ( $10U_p \approx 20$  eV) [27,28], we see that using an APT as an injection mechanism for EWPs makes it possible to produce electrons at energies not normally accessible with the IR field alone. The transfer of energy to the electron is somewhat affected by the atomic potential, as exemplified by the asymmetry between the low and the high energy parts of the spectrum. Although the experiment includes averaging effects, due to pulse-to-pulse variations in the APT [29], the finite length of the dressing field, and volume effects, the agreement between our experimental data (Fig. 2) and the theoretical single-atom predictions (Fig. 1), which were calculated using the experimental parameters, is striking.

We have also investigated the influence of a frequency modulation (chirp) of the attosecond pulses and consequently of the EWPs on their interaction with the IR field. Figure 3 shows a result obtained for chirped (340 as) pulses. When the momentum change of the EWPs goes through zero ( $\omega\tau = \pm \frac{\pi}{2}$ ), the contributions to the electron spectrum due to two consecutive attosecond pulses do not have the same spectral width. The narrower contribution will dominate the resulting photoelectron spectrum, leading to an asymmetric electron distribution relative to zero delay [in contrast to Fig. 2(b)]. The observation of these effects clearly indicates the possibility of controlling continuum dynamics not only by controlling the timing, but also the time-frequency characteristics of the EWPs.

In conclusion, we have generated attosecond EWPs with a duration of less than 200 as close to threshold in argon using tailored APTs. Furthermore, we studied their interaction with a strong IR field. With the pulse parameters used, the ionization is dominated by the APT and tunable ATI plateaus appear as an effect of the dressing field. The strong delay dependence seen for these ATI spectra is a direct consequence of the confinement of the EWPs to a shorter time than the period of the IR field. These results open the door to the generation of tunable and well characterized attosecond EWPs which are essential for the study and control of a large number of atomic and molecular strong-field processes, such as harmonic generation and multiple ionization [20,30].

This research was supported by the Marie Curie European Programme (MEIF-CT-2004-009268; MRTN-CT-2003-505138, XTRA), the Access to Research Infrastructures activity in the Sixth Framework Programme of the EU (Contract No. RII3-CT-2003-506350, Laserlab Europe), the Knut and Alice Wallenberg Foundation, the Swedish Science Council,

and the National Science Foundation through Grant No. PHY-0401625. M.G. acknowledges the support of the Louisiana Board of Regents through Grant No. LEQSF(2004-07)-RD-A-09.

---

\*On leave from Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, Szeged, Hungary.

- [1] P. M. Paul *et al.*, Science **292**, 1689 (2001).
- [2] Y. Mairesse *et al.*, Science **302**, 1540 (2003).
- [3] S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, and M. J. J. Vrakking, Phys. Rev. Lett. **91**, 223902 (2003).
- [4] P. Tzallas *et al.*, Nature (London) **426**, 267 (2003).
- [5] R. López-Martens *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 033001 (2005).
- [6] M. Hentschel *et al.*, Nature (London) **414**, 509 (2001).
- [7] R. Kienberger *et al.*, Science **297**, 1144 (2002).
- [8] R. Kienberger *et al.*, Nature (London) **427**, 817 (2004).
- [9] M. Drescher *et al.*, Nature (London) **419**, 803 (2002).
- [10] E. Goulielmakis *et al.*, Science **305**, 1267 (2004).
- [11] M. Ferray *et al.*, J. Phys. B **21**, L31 (1988).
- [12] K. T. Kim, C. M. Kim, M. G. Baik, G. Umesh, and C. H. Nam, Phys. Rev. A **69**, 051805 (2004).
- [13] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman, Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979).
- [14] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993).
- [15] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- [16] H. Niikura *et al.*, Nature (London) **417**, 917 (2002).
- [17] H. Niikura *et al.*, Nature (London) **421**, 826 (2003).
- [18] A. S. Alnaser *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 183202 (2004).
- [19] F. Légaré *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 093002 (2003).
- [20] K. J. Schafer, M. B. Gaarde, A. Heinrich, J. Biegert, and U. Keller, Phys. Rev. Lett. **92**, 023003 (2004).
- [21] F. Quéré, Y. Mairesse, and I. Itatani, J. Mod. Opt. **52**, 339 (2005).
- [22] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, in *Atoms in Intense Laser Fields*, edited by M. Gavrilu (Academic, New York, 1992).
- [23] R. Taïeb *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 363 (1996).
- [24] J. Itatani *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 173903 (2002).
- [25] R. López-Martens *et al.*, Appl. Phys. B **78**, 835 (2004).
- [26] H. G. Muller, Appl. Phys. B **74**, S17 (2002).
- [27] M. Lewenstein, K. C. Kulander, K. J. Schafer, and P. H. Bucksbaum, Phys. Rev. A **51**, 1495 (1995).
- [28] W. Becker, A. Lohr, and M. Kleber, J. Phys. B **27**, L325 (1994).
- [29] K. Varjú *et al.*, J. Mod. Opt. **52**, 379 (2005).
- [30] P. Antoine *et al.*, in *Proceedings of the 7th International Conference on Multiphoton Processes*, Institute of Physics Conference Series Number 154, edited by P. Lambropoulos and H. Walther (Institute of Physics Publishing, Berkshire, 1996), p. 142.

# Bibliographie

- Agostini, P., Fabre, F., Mainfray, G., Petite, G., and Rahman, N. K. (1979). Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42(17) :1127–1130. [169](#)
- Agostini, P. and Gobert, O. (2004). Introduction to the characterization of femtosecond and attosecond light pulses. *Conference Proceedings, Atoms and Plasmas in Super-Intense Laser Fields*, 88 :3. [12](#), [93](#)
- Altucci, C., Delfin, C., Roos, L., Gaarde, M. B., L’Huillier, A., Mercer, I., Starczewski, T., and Wahlstrom, C.-G. (1998). Frequency-resolved time-gated high-order harmonics. *Phys. Rev. A*, 58(5) :3934–3941. [64](#)
- Anderson, M., de Araujo, L., Kosik, E., and Walmsley, I. (2000). The effects of noise on ultrashort-optical-pulse measurement using spider. *Appl. Phys. B*, 70(7) :S85 – S93. [44](#), [53](#), [54](#), [56](#)
- Antoine, P. et al., editors (1996a). *Proceedings of the 7th International Conference on Multiphoton Processes*. Physics Publishing, Institute of Physics Conference Series Number 154, Eds. P. Lambropoulos and H. Walther. [168](#)
- Antoine, P., L’Huillier, A., and Lewenstein, M. (1996b). Attosecond pulse trains using high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 77(7) :1234–1237. [25](#), [32](#), [33](#), [94](#), [95](#), [96](#), [97](#), [114](#)
- Antoine, P., Milosevic, D. B., L’Huillier, A., Gaarde, M. B., Salieres, P., and Lewenstein, M. (1997). Generation of attosecond pulses in macroscopic media. *Phys. Rev. A*, 56(6) :4960–4969. [32](#), [96](#), [98](#)
- Aseyev, S. A., Ni, Y., Frasinski, L. J., Muller, H. G., and Vrakking, M. J. J. (2003). Attosecond angle-resolved photoelectron spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 91(22) :223902. [70](#), [93](#), [97](#), [169](#)
- Augst, S., Strickland, D., Meyerhofer, D., Chin, S., and Eberly, J. (1989). Tunneling ionization of noble gases in a high intensity laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 63(20) :2212. [16](#)



- Balcou, P., Salieres, P., L'Huillier, A., and Lewenstein, M. (1997). Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A*, 55(4) :3204–3210. [95](#)
- Baltuska, A., Udem, T., Uiberacker, M., Hentschel, M., Goulielmakis, E., Gohle, C., Holzwarth, R., Yakovlev, V. S., Scrinzi, A., Hansch, T. W., and Krausz, F. (2003). Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421(6923) :611–615. [107](#), [155](#)
- Bellini, M., Lynga, C., Tozzi, A., Gaarde, M. B., Hansch, T. W., L'Huillier, A., and Wahlstrom, C.-G. (1998). Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 81(2) :297–300. [118](#)
- Bouhal, A., Evans, R., Grillon, G., Mysyrowicz, A., Breger, P., Agostini, P., Constantinescu, R. C., Muller, H. G., and von der Linde, D. (1997). Cross-correlation measurement of femtosecond noncollinear high-order harmonics. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14 :950. [41](#)
- Brabec, T. and Krausz, F. (2000). Intense few-cycle laser fields : Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, 72 :545. [11](#), [107](#)
- Budil, K. S., Salieres, P., Perry, M. D., and L'Huillier, A. (1993). Influence of ellipticity on harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 48(5) :R3437–R3440. [63](#), [83](#), [110](#)
- Chang, Z. (2004). Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau. *Phys. Rev. A*, 70(4) :043802. [110](#)
- Chang, Z. (2005). Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating. *Phys. Rev. A*, 71(2) :023813. [110](#), [112](#)
- Chang, Z., Rundquist, A., Wang, H., Murnane, M. M., and Kapteyn, H. C. (1997). Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 79(16) :2967–2970. [12](#), [31](#)
- Constant, E. (1997). PhD thesis, University of Sherbrooke, Canada. [65](#), [110](#), [139](#)
- Corkum, P. B. (1993). Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13) :1994–1997. [15](#)
- Corkum, P. B., Burnett, N. H., and Ivanov, M. Y. (1994). Subfemtosecond pulses. *Opt. Lett.*, 19 :1870. [64](#), [110](#)
- Cormier, E., Walmsley, I. A., Kosik, E. M., Wyatt, A. S., Corner, L., and DiMauro, L. F. (2005). Self-referencing, spectrally, or spatially encoded spectral interferometry for the complete characterization of attosecond electromagnetic pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94(3) :033905. [53](#), [66](#)

- CXRO (2005). Center for x-ray optics. *http://www-cxro.lbl.gov/*. 79, 125
- Delmotte, F., Ravet, M., Bridou, F., Varniere, F., Zeitoun, P., Hubert, S., Vanbostal, L., and Soullie, G. (2002). X-ray-ultraviolet beam splitters for the michelson interferometer. *Appl. Opt.*, 41(28) :5905. 46
- Dinu, L. C., Muller, H. G., Kazamias, S., Mullot, G., Auge, F., Balcou, P., Paul, P. M., Kovacev, M., Breger, P., and Agostini, P. (2003). Measurement of the subcycle timing of attosecond xuv bursts in high-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 91(6) :063901. 70, 81, 83, 93, 97
- Dorrer, C. (1999). Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 :1160. 51, 58
- Dorrer, C. and Kang, I. (2003). Highly sensitive direct characterization of femtosecond pulses by electro-optic spectral shearing interferometry. *Opt. Lett.*, 28 :477. 45
- Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Tempea, G., Spielmann, C., Reider, G. A., Corkum, P. B., and Krausz, F. (2001). X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 291 :1923. 135
- Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Uiberacker, M., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., and Krausz, F. (2002). Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 439 :803. 159, 168
- Dykhne, A. M. and Yudin, G. L. (1977). *Sov. Phys. Usp.*, 20 :80. 133
- Dykhne, A. M. and Yudin, G. L. (1978). *Sov. Phys. Usp.*, 21 :549. 133
- Eppink, A. and Parker, D. (1997). Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses : Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen. *Rev. Sci. Instrum.*, 68 :3477. 136
- Farkas, G. and Toth, C. (1992). Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases. *Phys. Lett. A*, 168 :447. 31
- Ferray, M., L’Huillier, A., Li, X. F., Lompré, L. A., Mainfray, G., and Manus, C. (1988). Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J. Phys. B*, 21 :L31. 11
- Gaarde, M. B. (2001). Time-frequency representations of high order harmonics. *Opt. Express*, 8 :529. 37
- Gaarde, M. B. (2004). Quantum path control using attosecond pulse trains. *Communication orale, Final Atto Meeting, Ringberg, Allemagne*. 170

- Gaarde, M. B., Salin, F., Constant, E., Balcou, P., Schafer, K. J., Kulander, K. C., and L'Huillier, A. (1999). Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components. *Phys. Rev. A*, 59(2) :1367–1373. [118](#)
- Gaarde, M. B. and Schafer, K. J. (2002a). Quantum path distributions for high-order harmonics in rare gas atoms. *Phys. Rev. A*, 65(3) :031406. [35](#), [62](#), [121](#)
- Gaarde, M. B. and Schafer, K. J. (2002b). Space-time considerations in the phase locking of high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 89(21) :213901. [114](#), [115](#), [117](#), [118](#)
- Glover, T. E., Schoenlein, R. W., Chin, A. H., , and Shank, C. V. (1996). Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :2468. [41](#)
- Goulielmakis, E., Uiberacker, M., Kienberger, R., Baltuska, A., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., and Krausz, F. (2004). Direct measurement of light waves. *Science*, 305 :1267. [156](#)
- Harris, S., Macklin, J., and Hänsch, T. (1993). Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation. *Opt. Comm.*, 100 :487. [31](#)
- Hentschel, M., Kienberger, R., Spielmann, C., Reider, G. A., Milosevic, N., Brabec, T., Corkum, P., Heinzmann, U., Drescher, M., and Krausz, F. (2001). Attosecond metrology. *Nature*, 414 :509. [107](#)
- Hergott, J.-F. (2001). *Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé et application à l'interférométrie UVX résolue en temps*. PhD thesis, Université Paris XI Orsay. [47](#)
- Hergott, J.-F., Kovacev, M., Merdji, H., Hubert, C., Mairesse, Y., Jean, E., Breger, P., Agostini, P., Carre, B., and Salieres, P. (2002). Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. *Phys. Rev. A*, 66(2) :021801. [47](#), [108](#)
- Iaconis, C. and Walmsley, I. A. (1998). Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 23 :792. [42](#), [44](#), [139](#)
- Itatani, J., Levesque, J., Zeidler, D., Niikura, H., Pepin, H., Kieffer, J. C., Corkum, P. B., and Villeneuve, D. M. (2004). Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432(7019) :867–871. [112](#)
- Itatani, J., Quéré, F., Yudin, G. L., Ivanov, M. Y., Krausz, F., and Corkum, P. B. (2002). Attosecond streak camera. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :173903. [139](#), [159](#)
- Johnsson, P., Lopez-Martens, R., Kazamias, S., Mauritsson, J., Valentin, C., Remetter, T., Varju, K., Gaarde, M. B., Mairesse, Y., Wabnitz, H., Salieres, P., Balcou, P., Schafer, K. J., and L'Huillier, A. (2005). Attosecond electron wave packet dynamics in strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.* [174](#)

- Kan, C., Capjack, C. E., Rankin, R., and Burnett, N. H. (1995). Spectral and temporal structure in high harmonic emission from ionizing atomic gases. *Phys. Rev. A*, 52(6) :R4336–R4339. [37](#)
- Kane, D. (1999). *IEEE J. Quant. Elec.*, 35 :1999. [142](#)
- Kazamias, S. and Balcou, P. (2004). Intrinsic chirp of attosecond pulses : Single-atom model versus experiment. *Phys. Rev. A*, 69(6) :063416. [21](#), [93](#)
- Keldysh, L. (1965). *Sov. Phys. JETP*, 20 :1307. [17](#), [22](#), [133](#)
- Kienberger, R., Goulielmakis, E., Uiberacker, M., Baltuska, A., Yakovlev, V., Bammer, F., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., and Krausz, F. (2004). Atomic transient recorder. *Nature*, 427 :817. [63](#), [107](#), [135](#), [139](#), [156](#), [159](#), [169](#)
- Kim, J.-H., Lee, D. G., Shin, H. J., and Nam, C. H. (2001). Wigner time-frequency distribution of high-order harmonics. *Phys. Rev. A*, 63(6) :063403. [37](#)
- Kim, K. T., Kim, C. M., Baik, M.-G., Umesh, G., and Nam, C. H. (2004). Single sub-50-attosecond pulse generation from chirp-compensated harmonic radiation using material dispersion. *Phys. Rev. A*, 69(5) :051805. [124](#), [129](#)
- Kornelis, W., Biegert, J., Tisch, J. W. G., Nisoli, M., Sansone, G., Vozzi, C., Silvestri, S. D., and Keller, U. (2003). Single-shot kilohertz characterization of ultrashort pulses by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. *Opt. Lett.*, 28 :281. [44](#)
- Kovacev, M. (2003). *Rayonnement harmonique d'ordre élevé : Génération d'impulsions attosecondes, Applications de la cohérence*. PhD thesis, Université Paris XI. [75](#)
- Kovacev, M., Mairesse, Y., Priori, E., Merdji, H., Tcherbakoff, O., Monchicourt, P., Breger, P., Mével, E., Constant, E., Salières, P., Carré, B., and Agostini, P. (2003). Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating. *Eur. Phys. J. D*, 26 :79–82. [64](#)
- Kruit, P. and Read, F. (1983). Magnetic field paralleliser for 2 pi electron-spectrometer and electron-image magnifier. *J. Phys. E Sci. Instrum.*, 16 :313. [74](#)
- Lein, M., Corso, P. P., Marangos, J. P., and Knight, P. L. (2003). Orientation dependence of high-order harmonic generation in molecules. *Phys. Rev. A*, 67(2) :023819. [113](#)
- Lein, M., Hay, N., Velotta, R., Marangos, J. P., and Knight, P. L. (2002). Interference effects in high-order harmonic generation with molecules. *Phys. Rev. A*, 66(2) :023805. [113](#)



- Lewenstein, M., Balcou, P., Ivanov, M. Y., L'Huillier, A., and Corkum, P. B. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49 :2117. [21](#), [22](#), [25](#), [26](#), [133](#)
- Lopez-Martens, R., Mauritsson, J., Johnsson, P., L'Huillier, A., Tcherbakoff, O., Zair, A., Mevel, E., and Constant, E. (2004a). Time-resolved ellipticity gating of high-order harmonic emission. *Phys. Rev. A*, 69(5) :053811. [64](#), [66](#)
- Lopez-Martens, R., Mauritsson, J., Johnsson, P., Varju, K., L'Huillier, A., Kornelis, W., Biegert, J., Keller, U., Gaarde, M., and Schafer, K. (2004b). Characterization of high-order harmonic radiation on femtosecond and attosecond time scales. *Appl. Phys. B*, 78(7-8) :835–840. [41](#), [169](#)
- Lopez-Martens, R., Varju, K., Johnsson, P., Mauritsson, J., Mairesse, Y., Salieres, P., Gaarde, M. B., Schafer, K. J., Persson, A., Svanberg, S., Wahlstrom, C.-G., and L'Huillier, A. (2005). Amplitude and phase control of attosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94(3) :033001. [121](#), [122](#), [124](#), [125](#), [172](#)
- Lynga, C., Gaarde, M. B., Delfin, C., Bellini, M., Hansch, T. W., L'Huillier, A., and Wahlstrom, C.-G. (1999). Temporal coherence of high-order harmonics. *Phys. Rev. A*, 60(6) :4823–4830. [118](#)
- Mairesse, Y., de Bohan, A., Frasinski, L. J., Merdji, H., Dinu, L. C., Monchicourt, P., Breger, P., Kovacev, M., Auguste, T., Carre, B., Muller, H. G., Agostini, P., and Salieres, P. (2004). Optimization of attosecond pulse generation. *Phys. Rev. Lett.*, 93(16) :163901. [25](#), [106](#), [108](#), [114](#)
- Mairesse, Y., de Bohan, A., Frasinski, L. J., Merdji, H., Dinu, L. C., Monchicourt, P., Breger, P., Kovacev, M., Taïeb, R., Carré, B., Muller, H. G., Agostini, P., and Salières, P. (2003). Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays. *Science*, 302 :1540. [25](#), [71](#), [94](#), [169](#)
- Mairesse, Y., Gobert, O., Breger, P., Merdji, H., Meynadier, P., Monchicourt, P., Perdrux, M., Salières, P., and Carré, B. (2005). High harmonic xuv spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :173903. [46](#)
- Mairesse, Y. and Quere, F. (2005). Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. Rev. A*, 71(1) :011401. [143](#)
- Mauritsson, J., Johnsson, P., Lopez-Martens, R., Varju, K., Kornelis, W., Biegert, J., Keller, U., Gaarde, M. B., Schafer, K. J., and L'Huillier, A. (2004). Measurement and control of the frequency chirp rate of high-order harmonic pulses. *Phys. Rev. A*, 70(2) :021801. [41](#), [62](#), [159](#), [165](#), [167](#)

- Mauritsson, J., Lopez-Martens, R., L’Huillier, A., and Schafer, K. J. (2003). Ponderomotive shearing for spectral interferometry of extreme-ultraviolet pulses. *Opt. Lett.*, 28 :2393. [46](#)
- McPherson, A., Gibson, G., Jara, H., Johann, U., Luk, T. S., McIntyre, I., Boyer, K., and Rhodes, C. K. (1987). Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4 :595. [11](#)
- Merdji, H., Kovacev, M., Salières, P., and Carré, B. (2005). Macroscopic control of high order harmonics quantum paths components. *En préparation*. [118](#)
- Milosevic, D. (2000). *J. Phys. B*, 33 :2479. [112](#)
- Monot, P., Doumy, G., Dobosz, S., Perdrix, M., D’Oliveira, P., Quéré, F., Réau, F., Martin, P., Audebert, P., Gauthier, J., and Geindre, J. (2004). High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma. *Opt. Lett.*, 29 :1. [148](#)
- Muller, A. and Laubscher, M. (2001). Spectral phase and amplitude interferometry for direct electric-field reconstruction. *Opt. Lett.*, 26 :1915. [59](#)
- Muller, H. G. (2002). Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions. *Appl. Phys. B*, 74 :S17. [69](#), [145](#), [159](#)
- Nantes (2005). Universite de nantes. <http://www.sciences.univ-nantes.fr/physique/perso/cortial>. [42](#)
- Niikura, H., Legare, F., Hasbani, R., Bandrauk, A. D., Ivanov, M. Y., Villeneuve, D. M., and Corkum, P. B. (2002). Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics. *Nature*, 417(6892) :917–922. [101](#), [169](#)
- Niikura, H., Legare, F., Hasbani, R., Ivanov, M. Y., Villeneuve, D. M., and Corkum, P. B. (2003). Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs. *Nature*, 421(6925) :826–829. [101](#), [169](#)
- Norin, J., Mauritsson, J., Johansson, A., Raarup, M. K., Buil, S., Persson, A., Duhr, O., Gaarde, M. B., Schafer, K. J., Keller, U., Wahlstrom, C.-G., and L’Huillier, A. (2002). Time-frequency characterization of femtosecond extreme ultraviolet pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 88(19) :193901. [41](#)
- Palik, E., editor (1998). *Handbook of optical constants of solids*. [125](#)
- Paul, P. (2001). *Ionisation multiphonique XUV-IR : Etudes et Applications à la mesure d’impulsions XUV Femto et Atto secondes*. PhD thesis, Université Paris VI. [75](#)

- Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Augé, F., Balcou, P., Muller, H. G., and Agostini, P. (2001). Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292 :1689. [13](#), [69](#), [93](#), [97](#), [159](#), [169](#)
- Platonenko, V. T. and Strelkov, V. V. (1999). Single attosecond soft-x-ray pulse generated with a limited laser beam. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 :435. [65](#), [110](#)
- Quéré, F., Itatani, J., Yudin, G. L., and Corkum, P. B. (2003). Attosecond spectral shearing interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 90(7) :073902. [46](#), [139](#)
- Salieres, P., Deroff, L. L., Auguste, T., Monot, P., d'Oliveira, P., Campo, D., Hergott, J.-F., Merdji, H., and Carre, B. (1999). Frequency-domain interferometry in the xuv with high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 83(26) :5483–5486. [47](#)
- Salieres, P., L’Huillier, A., and Lewenstein, M. (1995). Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 74(19) :3776–3779. [37](#), [118](#)
- Salières, P., Carré, B., Déroff, L. L., Grasbon, F., Paulus, G. G., Walther, H., Kopold, R., Becker, W., Milojevic, D. B., Sanpera, A., and Lewenstein, M. (2001). Feynman’s path-integral approach for intense-laser-atom interactions. *Science*, 292 :902–905. [23](#), [37](#), [119](#)
- Salières, P., L’Huillier, A., Antoine, P., and Lewenstein, M. (1999). Study of the spatial and temporal coherence of high-order harmonics. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, 41 :83. [11](#)
- Sansone, G., Vozzi, C., Stagira, S., Pascolini, M., Poletto, L., Villoresi, P., Tondello, G., Silvestri, S. D., and Nisoli, M. (2004). Observation of carrier-envelope phase phenomena in the multi-optical-cycle regime. *Phys. Rev. Lett.*, 92(11) :113904. [66](#)
- Schafer, K. J., Gaarde, M. B., Heinrich, A., Biegert, J., and Keller, U. (2004). Strong field quantum path control using attosecond pulse trains. *Phys. Rev. Lett.*, 92(2) :023003. [168](#), [170](#)
- Schafer, K. J. and Kulander, K. C. (1997). High harmonic generation from ultrafast pump lasers. *Phys. Rev. Lett.*, 78(4) :638–641. [37](#)
- Schafer, K. J., Yang, B., DiMauro, L. F., and Kulander, K. C. (1993). Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70(11) :1599–1602. [15](#)
- Schins, J. M., Breger, P., Agostini, P., Constantinescu, R. C., Muller, H. G., Grillon, G., Antonetti, A., and Mysyrowicz, A. (1994). Observation of laser-assisted auger decay in argon. *Phys. Rev. Lett.*, 73(16) :2180–2183. [41](#)
- Schnurer, M., Spielmann, C., Wobrauschek, P., Streli, C., Burnett, N. H., Kan, C., Ferencz, K., Koppitsch, R., Cheng, Z., Brabec, T., and Krausz, F. (1998). Coherent

- 0.5-keV x-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser. *Phys. Rev. Lett.*, 80(15) :3236–3239. [12](#), [31](#)
- Sekikawa, T., Kanai, T., and Watanabe, S. (2003). Frequency-resolved optical gating of femtosecond pulses in the extreme ultraviolet. *Phys. Rev. Lett.*, 91(10) :103902. [42](#)
- Sekikawa, T., Katsura, T., Miura, S., and Watanabe, S. (2002). Measurement of the intensity-dependent atomic dipole phase of a high harmonic by frequency-resolved optical gating. *Phys. Rev. Lett.*, 88(19) :193902. [42](#)
- Sekikawa, T., Kosuge, A., Kanai, T., and Watanabe, S. (2004). Nonlinear optics in the extreme ultraviolet. *Nature*, 432(7017) :605–608. [63](#), [131](#)
- Seres, J., Seres, E., Verhoef, A. J., Tempea, G., Streli, C., Wobrauschek, P., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Spielmann, C., and Krausz, F. (2005). Source of coherent kiloelectronvolt x-rays. *Nature*, 433(7026) :596–596. [12](#), [31](#), [168](#)
- Shan, B., Ghimire, S., and Chang, Z. (2005). Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating. *Journ. Mod. Opt.*, 52 :277. [169](#)
- Sheehy, B., Martin, J. D. D., DiMauro, L. F., Agostini, P., Schafer, K. J., Gaarde, M. B., and Kulander, K. C. (1999). High harmonic generation at long wavelengths. *Phys. Rev. Lett.*, 83(25) :5270–5273. [102](#)
- Strelkov, V., Zair, A., Tcherbakoff, O., Lopez-Martens, R., Cormier, E., Mevel, E., and Constant, E. (2004). Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental. *Appl. Phys. B*, 78 :879. [110](#)
- Tcherbakoff, O., Mevel, E., Descamps, D., Plumridge, J., and Constant, E. (2003). Time-gated high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 68(4) :043804. [64](#)
- Thomson, M., Dudley, J., Barry, L., and Harvey, J. (1998). Complete pulse characterization at 1.5  $\mu\text{m}$  by cross-phase modulation in optical fibers. *Opt. Lett.*, 23 :1585. [142](#)
- Tournois, P. (1997). Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems. *Opt. Comm.*, 140 :245. [48](#)
- Trebino, R., editor (2000). *Frequency-Resolved Optical Gating*. Kluwer Academic Publishers. [90](#), [140](#), [141](#), [142](#)
- Tzallas, P., Charalambidis, D., Papadogiannis, N. A., Witte, K., and Tsakiris, G. D. (2003). Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 426(6964) :267–271. [109](#), [131](#), [169](#)

- Varju, K., Mairesse, Y., Carré, B., Gaarde, M. B., Johnsson, P., Kazamias, S., Lopez-Martens, R., Mauritsson, J., Schafer, K. J., Balcou, P., L'Huillier, A., and Salieres., P. (2005). Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *Journal of Modern Optics*, 52 :379. [34](#), [62](#), [163](#), [165](#), [167](#)
- Veniard, V., Taieb, R., and Maquet, A. (1996). Phase dependence of (n+1)-color (n [greater-than] 1) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics. *Phys. Rev. A*, 54(1) :721–728. [69](#), [71](#)
- Wahlstrom, C.-G., Larsson, J., Persson, A., Starczewski, T., Svanberg, S., Salieres, P., Balcou, P., and L'Huillier, A. (1993). High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser. *Phys. Rev. A*, 48(6) :4709–4720. [58](#)
- Walmsley, I. and Wong, V. (1996). *J. Opt. Soc. Am. B*, 13 :2453. [131](#)
- Yudin, G. L. and Ivanov, M. Y. (2001). Nonadiabatic tunnel ionization : looking inside a laser cycle. *Phys. Rev. A*, 64 :013409. [174](#)
- Zewail, A. (2000). Femtochemistry : atomic-scale dynamics of the chemical bond (adapted from the nobel lecture). *J. Phys. Chem. A*, 104 :5660–5694. [11](#)